

2/2



**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<p><b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> :</b> <b>C08K 5/5399, C08L 69/00, C08K 13/02</b> <b>// (C08K 13/02, 3:00, 5:5399)</b></p>	<b>A1</b>	<p><b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/00541</b></p> <p><b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 6. Januar 2000 (06.01.00)</p>
<p><b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/04059</p> <p><b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 12. Juni 1999 (12.06.99)</p> <p><b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 28 536.1      26. Juni 1998 (26.06.98)      DE</p> <p><b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).</p> <p><b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ECKEL, Thomas [DE/DE]; Pfauenstrasse 51, D-41540 Dormagen (DE). ZOBEL, Michael [DE/DE]; Linnicher Strasse 10, D-40547 Düsseldorf (DE). WITTMANN, Dieter [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Strasse 41, D-51375 Leverkusen (DE).</p> <p><b>(74) Gemeinsamer Vertreter:</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).</p>	<p><b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p>	
<p><b>(54) Title:</b> FLAME RESISTANT POLYCARBONATE/ABS PLASTIC MOLDING MATERIALS</p> <p><b>(54) Bezeichnung:</b> FLAMMWIDRIGE POLYCARBONAT/ABS-FORMMASSEN</p> <p><b>(57) Abstract</b></p> <p>The invention relates to polycarbonate/ABS plastic molding materials containing phosphazenes and inorganic nanoparticles which exhibit an excellent flame protection and very good mechanical properties.</p> <p><b>(57) Zusammenfassung</b></p> <p>Die vorliegende Erfindung betrifft Polycarbonat/ABS-Formmassen, enthaltend Phosphazene und anorganische Nanopartikel, die einen ausgezeichneten Flammschutz und sehr gute mechanische Eigenschaften aufweisen.</p>		

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland		
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

**Flammwidrige Polycarbonat/ABS-Formmassen**

Die vorliegende Erfindung betrifft Polycarbonat/ABS-Formmassen, enthaltend  
5 Phosphazene und anorganische Nanopartikel, die einen ausgezeichneten Flamm-  
schutz und sehr gute mechanische Eigenschaften aufweisen.

In DE-A 196 16 968 werden polymerisierbare Phosphazenderivate, Verfahren zu  
deren Herstellung und deren Verwendung als aushärtbare Bindemittel für Lacke,  
10 Beschichtungen, Füllmittel, Spachtelmassen, Klebstoffe, Formteile oder Folien be-  
schrieben.

In WO 97/40092 werden flammgeschützte Formmassen aus thermoplastischen Poly-  
meren und unsubstituierten Phosphazenen vom Typ  $\text{PN}_{n-x}\text{H}_{1-y}$  beschrieben.

15 EP-A 728 811 beschreibt eine thermoplastische Mischung bestehend aus aromati-  
schem Polycarbonat, Ppropfcopolymer, Copolymer und Phosphazenen, welche gute  
Flammschutzeigenschaften, Schlagzähigkeit und Wärmeformbeständigkeit aufwei-  
sen.

20 Eine Kombination aus Phosphazenen und anorganischen Nanopartikeln wird weder  
in WO 97/400 92 noch in EP-A 728 811 beschrieben.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Bereitstellung von Polycarbonat/ABS-  
25 Formmassen mit einer ausgezeichneten Flammfestigkeit, hoher Wärmeformbestän-  
digkeit und ausgezeichneten mechanischen Eigenschaften wie Kerbschlagzähigkeit,  
Bindenahtfestigkeit und Spannungsrißbeständigkeit. Diese Eigenschaftskombination  
wird besonders bei Anwendungen im Bereich Datentechnik wie etwa für Gehäuse  
von, Monitoren, Druckern oder Kopierer gefordert.

30

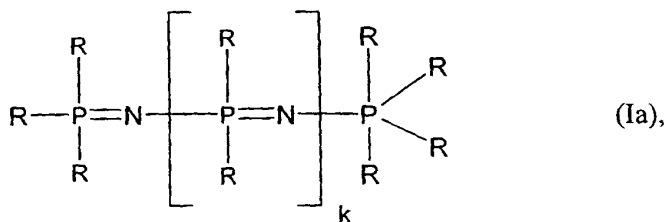
Es wurde nun gefunden, daß PC/ABS-Formmassen, die Phosphazene in Kombination mit anorganischen Nanopartikeln enthalten, die gewünschten Eigenschaften aufweisen.

- 5 Gegenstand der Erfindung sind daher thermoplastische Formmassen enthaltend Polycarbonat und/oder Polyestercarbonat, Pfropfpolymerisat, Phosphazene und anorganisches Pulver mit einem durchschnittlichen Teilchendurchmesser kleiner gleich 200 nm, welche weitere Polymere, beispielsweise thermoplastische Vinyl(co)polymerisate und/oder Polyalkylenterephthalate und gegebenenfalls andere Zusatzstoffe  
10 enthalten können.

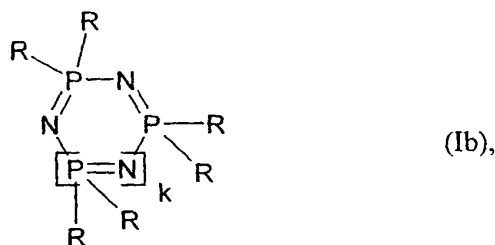
Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise thermoplastische Formmassen enthaltend

- 15 A) 40 bis 99, vorzugsweise 60 bis 98,5 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder Polyestercarbonat
- B) 0,5 bis 60, vorzugsweise 1 bis 40, insbesondere 2 bis 25 Gew.-Teile Pfropfpolymerisat von
- 20 B.1) 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-% eines oder mehrerer Vinylmonomeren auf
- B.2) 95 bis 5, vorzugsweise 20 bis 70 Gew.% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit einer Glasumwandlungstemperatur  $<10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $<0^{\circ}\text{C}$ ,  
25 besonders bevorzugt  $<-20^{\circ}\text{C}$ ,
- C) 0 bis 45, vorzugsweise 0 bis 30, besonders bevorzugt 2 bis 25 Gew.-Teile  
30 mindestens eines thermoplastischen Polymers, ausgewählt aus der Gruppe der Vinyl(co)polymerisate und Polyalkylenterephthalate,

- D) 0,1 bis 50, vorzugsweise 2 bis 35, insbesondere 5 bis 25 Gew.-Teile mindestens einer Komponente, ausgewählt aus der Gruppe der Phosphazene der Formeln



5



worin

- 10 R jeweils gleich oder verschieden ist und für Amino, jeweils gegebenenfalls halogeniertes, vorzugsweise mit Fluor halogeniertes C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl, oder C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl, vorzugsweise Phenoxy, Naphthyloxy, oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl vorzugsweise Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, steht,
- 15
- k für 0 oder eine Zahl von 1 bis 15, vorzugsweise für eine Zahl von 1 bis 10 steht,

20

- E) 0,5 bis 40, vorzugsweise 1 bis 25, besonders bevorzugt 2 bis 15 Gew.-Teile feinteiliges anorganisches Pulver mit einem durchschnittlichen Teilchendurchmesser von kleiner gleich 200 nm, und
- 5 F) 0 bis 5 Gew.-Teile, vorzugsweise 0,15 bis 1 Gew.-Teil, besonders bevorzugt 0,1 bis 0,5 Gew.-Teile eines fluorierten Polyolefins.

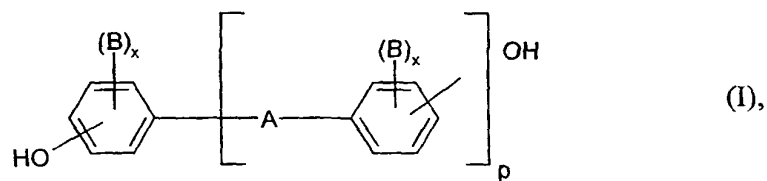
### Komponente A

- 10 Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und/oder aromatische Polyester-carbonate gemäß Komponente A sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren herstellbar (zur Herstellung aromatischer Polycarbonate siehe beispielsweise Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Interscience Publishers, 1964 sowie die DE-AS 1 495 626, DE-OS 2 232 877, DE-OS 2 703 376, 15 DE-OS 2 714 544, DE-OS 3 000 610, DE-OS 3 832 396; zur Herstellung aromatischer Polyester-carbonate z. B. DE-OS 3 077 934).

- Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z. B. durch Umsetzung von Diphenolen mit Kohlensäurehalogeniden, vorzugsweise Phosgen und/oder mit 20 aromatischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalogeniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung von Kettenabbrechern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Verwendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispielsweise Triphenolen oder Tetraphenolen.

25

Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen Polyester-carbonate sind vorzugsweise solche der Formel (I)

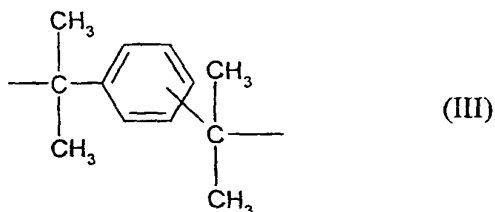
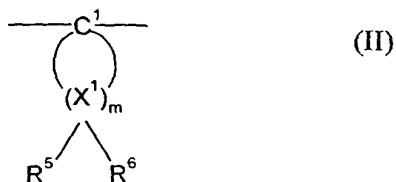


wobei

- 5     A     eine Einfachbindung, C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkylen, C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyliden, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkylen, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen, an das weitere aromatische gegebenenfalls Heteroatome enthaltende Ringe kondensiert sein können,

oder ein Rest der Formel (II) oder (III)

10



- 15     B     jeweils C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom

x     jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,

- 20     p     1 oder 0 sind, und

$R^5$  und  $R^6$  für jedes  $X^1$  individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff oder  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl,

$X^1$  Kohlenstoff und

5

m eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten, mit der Maßgabe, daß an mindestens einen Atom  $X^1$ ,  $R^5$  und  $R^6$  gleichzeitig Alkyl sind.

Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resocin, Dihydroxydiphenole, Bis-  
10 (hydroxyphenyl)- $C_1$ - $C_5$ -alkane, Bis-(hydroxyphenyl)- $C_5$ - $C_6$ -cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und  $\alpha,\alpha$ -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

15 Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bisphenol-A, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3.3.5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenyl-sulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten  
20 Derivate wie beispielsweise 2,2-Bis(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

Insbesondere bevorzugt ist 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A).

25 Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden.

Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

30 Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate geeignete Kettenabbrucher sind beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder



2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-OS 2 842 005 oder Monoalkylphenol bzw. Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-tert.-Butylphenol, p-iso-Octylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol und 2-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol. Die Menge an einzusetzen-  
5 den Kettenabbrechern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol-%, und 10 Mol-%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate haben mittlere Gewichtsmittelmolekulargewichte ( $M_w$ , gemessen z. B. durch Ultrazentrifuge oder Streulichtmes-  
10 sung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise 20 000 bis 80 000.

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate können in bekannter Weise verzweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol-%, bezo-  
15 gen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an dreifunktionellen oder mehr als dreifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei und mehr phenolischen Gruppen.

Geeignet sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate. Zur Herstellung erfindungsgemäßer Copolycarbonate gemäß Komponente A können auch 1 bis  
20 25 Gew.-%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.% (bezogen auf die Gesamtmenge an einzusetzenden Diphenolen) Polydiorganosiloxane mit Hydroxy-aryloxy-Endgruppen eingesetzt werden. Diese sind bekannt (s. beispielsweise US-Patent 3 419 634) bzw. nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxan-  
25 haltiger Copolycarbonate wird z. B. in DE-OS 3 334 782 beschrieben.

Bevorzugte Polycarbonate sind neben den Bisphenol-A-Homopolycarbonaten die Copolycarbonate von Bisphenol-A mit bis zu 15 Mol-%, bezogen auf die Molsummen an Diphenolen, anderen als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannten  
30 Diphenole, insbesondere 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Polyester-carbonate sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Terephthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbonsäure.

- 5      Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

Bei der Herstellung von Polyester-carbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen als bifunktionelles Säurederivat mitverwendet.

10

Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyester-carbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls durch  $C_1$ - $C_{22}$ -Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische  $C_2$ - $C_{22}$ -Monocarbonsäurechloride in Betracht.

15

Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol-%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf Mole Diphenole und Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrecher auf Mole Dicarbonsäuredichloride.

20

Die aromatischen Polyester-carbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

- 25      Die aromatischen Polyester-carbonate können sowohl linear als auch in bekannter Weise verzweigt sein (siehe dazu ebenfalls DE-OS 2 940 024 und DE-OS 3 007 934).

Als Verzweigungsmittel können beispielsweise 3- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3',4,4'-Benzophenon-tetracarbonsäure-tetrachlorid, 1,4,5,8-Naphthalintetracarbonsäure-tetrachlorid oder Pyromellithsäure-tetrachlorid, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% (bezogen auf einge-

30

setzte Dicarbonsäuredichloride) oder 3- oder mehrfunktionelle Phenole, wie Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2,4,4-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-hydroxyphenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, 2,6-Bis(2-hydroxy-5-methyl-benzyl)-4-methylphenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Tetra-(4-[4-hydroxyphenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis[4,4'-dihydroxytri-phenyl)-methyl]-benzol, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% bezogen auf eingesetzte Diphenole verwendet werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.

In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis zu 100 Mol-%, insbesondere bis zu 80 Mol-%, besonders bevorzugt bis zu 50 Mol-%, bezogen auf die Summe an Estergruppen und Carbonatgruppen. Sowohl der Ester- als auch der Carbonatanteil der aromatischen Polyestercarbonate kann in Form von Blöcken oder statistisch verteilt im Polykondensat vorliegen.

Die relative Lösungsviskosität ( $\eta_{rel}$ ) der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate liegt im Bereich 1,18 bis 1,4, vorzugsweise 1,22 bis 1,3 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polycarbonat oder Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-Lösung bei 25°C).

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch untereinander eingesetzt werden.

### **Komponente B**

Die Komponente B umfaßt ein oder mehrere Pfropfpolymerisate von

B.1 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-%, wenigstens eines Vinylmonomeren auf

5 B.2 95 bis 5, vorzugsweise 70 bis 20 Gew.-% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit Glasübergangstemperaturen  $< 10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $< 0^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt  $< -20^{\circ}\text{C}$ .

10 Die Pfropfgrundlage B.2 hat im allgemeinen eine mittlere Teilchengröße ( $d_{50}$ -Wert) von 0,05 bis 5  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 0,10 bis 0,5  $\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt 0,20 bis 0,40  $\mu\text{m}$ .

Monomere B.1 sind vorzugsweise Gemische aus

15 B.1.1 50 bis 99 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten (wie beispielsweise Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder Methacrylsäure-( $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ )-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat) und

20 B.1.2 1 bis 50 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile wie Acrylnitril und Methacrylnitril) und/oder (Meth)Acrylsäure-( $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ )-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

25

Bevorzugte Monomere B.1.1 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere B.1.2 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und Methylmethacrylat.

30

Besonders bevorzugte Monomere sind B.1.1 Styrol und B.1.2 Acrylnitril.

Für die Pfropfpolymerisate B geeignete Pfropfgrundlagen B.2 sind beispielsweise Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, also solche auf Basis Ethylen/Propylen und gegebenenfalls Dien, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke.

Bevorzugte Pfropfgrundlagen B.2 sind Dienkautschuke (z. B. auf Basis Butadien, Isopren etc.) oder Gemische von Dienkautschuken oder Copolymerisate von Dienkautschuken oder deren Gemischen mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren (z.B. gemäß B.1.1 und B.1.2), mit der Maßgabe, daß die Glasübergangstemperatur der Komponente B.2 unterhalb  $<10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $<0^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt  $<-10^{\circ}\text{C}$  liegt.

Besonders bevorzugt ist reiner Polybutadienkautschuk.

Besonders bevorzugte Polymerisate B sind z.B. ABS-Polymerisate (Emulsions-, Masse- und Suspensions-ABS), wie sie z. B. in der DE-OS 2 035 390 (=US-PS 3 644 574) oder in der DE-OS 2 248 242 (=GB-PS 1 409 275) bzw. in Ullmann, Enzyklopädie der Technischen Chemie, Bd. 19 (1980), S. 280 ff. beschrieben sind. Der Gelanteil der Pfropfgrundlage B.2 beträgt mindestens 30 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 40 Gew.-% (in Toluol gemessen).

Die Pfropfcopolymerisate B werden durch radikalische Polymerisation, z.B. durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation, vorzugsweise durch Emulsionspolymerisation hergestellt.

Besonders geeignete Pfropfkautschuke sind auch ABS-Polymerisate, die durch Redox-Initiierung mit einem Initiatorsystem aus organischem Hydroperoxid und Ascorbinsäure gemäß US-P 4 937 285 hergestellt werden.

Da bei der Pfropfreaktion die Pfropfmonomeren bekanntlich nicht unbedingt vollständig auf die Pfropfgrundlage aufgepfropft werden, werden erfindungsgemäß unter Pfropfpolymerisaten B auch solche Produkte verstanden, die durch (Co)Polymerisation der Pfropfmonomere in Gegenwart der Pfropfgrundlage gewonnen werden und bei der Aufarbeitung mit anfallen.

Geeignete Acrylatkautschuke gemäß B.2 der Polymerisate B sind vorzugsweise Polymerisate aus Acrylsäurealkylestern, gegebenenfalls mit bis zu 40 Gew.-%, bezogen auf B.2 anderen polymerisierbaren, ethylenisch ungesättigten Monomeren. Zu den bevorzugten polymerisierbaren Acrylsäureestern gehören C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylester, beispielsweise Methyl-, Ethyl-, Butyl-, n-Octyl- und 2-Ethylhexylester; Halogenalkylester, vorzugsweise Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkyl-ester, wie Chlorethylacrylat sowie Mischungen dieser Monomeren.

Zur Vernetzung können Monomere mit mehr als einer polymerisierbaren Doppelbindung copolymerisiert werden. Bevorzugte Beispiele für vernetzende Monomere sind Ester ungesättigter Monocarbonsäuren mit 3 bis 8 C-Atomen und ungesättigter einwertiger Alkohole mit 3 bis 12 C-Atomen, oder gesättigter Polyole mit 2 bis 4 OH-Gruppen und 2 bis 20 C-Atomen, wie z.B. Ethylenglykoldimethacrylat, Allylmethacrylat; mehrfach ungesättigte heterocyclische Verbindungen, wie z.B. Trivinyl- und Triallylcyanurat; polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinylbenzole; aber auch Triallylphosphat und Diallylphthalat.

Bevorzugte vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat, Ethylenglykoldimethacrylat, Diallylphthalat und heterocyclische Verbindungen, die mindestens 3 ethylenisch ungesättigte Gruppen aufweisen.

Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cyclischen Monomere Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat, Triacryloylhexahydro-s-triazin, Triallylbenzole. Die Menge der vernetzten Monomere beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf die Pfropfgrundlage B.2.

Bei cyclischen vernetzenden Monomeren mit mindestens 3 ethylenisch ungesättigten Gruppen ist es vorteilhaft, die Menge auf unter 1 Gew.-% der Pffropfgrundlage B.2 zu beschränken.

5

Bevorzugte "andere" polymerisierbare, ethylenisch ungesättigte Monomere, die neben den Acrylsäureestern gegebenenfalls zur Herstellung der Pffropfgrundlage B.2 dienen können, sind z. B. Acrylnitril, Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, Acrylamide, Vinyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkylether, Methylmethacrylat, Butadien. Bevorzugte Acrylatkautschuke als Pffropfgrundlage B.2 sind Emulsionspolymerisate, die einen Gelgehalt von mindestens 60 Gew.-% aufweisen.

10

Weitere geeignete Pffropfgrundlagen gemäß B.2 sind Silikonkautschuke mit pffropfaktiven Stellen, wie sie in den DE-OS 3 704 657, DE-OS 3 704 655, DE-OS 3 631 540 und DE-OS 3 631 539 beschrieben werden.

15

Der Gelgehalt der Pffropfgrundlage B.2 wird bei 25°C in einem geeigneten Lösungsmittel bestimmt (M. Hoffmann, H. Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme-Verlag, Stuttgart 1977).

20

Die mittlere Teilchengröße  $d_{50}$  ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugenmessung (W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782-1796) bestimmt werden.

25

### **Komponente C**

Die Komponente C umfaßt ein oder mehrere thermoplastische Vinyl (co)polymerisate C.1 und/oder Polyalkylenterephthalate C.2.

30

Geeignet sind als Vinyl(co)Polymerisate C.1 Polymerisate von mindestens einem Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile), (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester, ungesättigte Carbonsäuren sowie Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren. Insbesondere geeignet sind (Co)Polymerisate aus

C.1.1 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 80 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kern-substituierten Vinylaromaten wie beispielsweise Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder Methacrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat), und

C.1.2 1 bis 50, vorzugsweise 20 bis 40 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile) wie Acrylnitril und Methacrylnitril und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder ungesättigte Carbonsäuren (wie Maleinsäure) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

Die (Co)Polymerisate C.1 sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei.

Besonders bevorzugt ist das Copolymerisat aus C.1.1 Styrol und C.1.2 Acrylnitril.

Die (Co)Polymerisate gemäß C.1 sind bekannt und lassen sich durch radikalische Polymerisation, insbesondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Masspolymerisation herstellen. Die (Co)Polymerisate gemäß Komponente C.1 besitzen vorzugsweise Molekulargewichte  $M_w$  (Gewichtsmittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation) zwischen 15 000 und 200 000.

Die Polyalkylenterephthalate der Komponente C.2 sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethyl-



estern oder Anhydriden, und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen Diolen sowie Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

5 Bevorzugte Polyalkylenterephthalate enthalten mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Dicarbonsäurekomponente Terephthalsäurereste und mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Mol.-%, bezogen auf die Diolkomponente Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-Reste.

10 Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexan-diessigsäure.

15 Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, andere aliphatische Diole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloalipatische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, 20 Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-( $\beta$ -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(4- $\beta$ -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan 25 (DE-OS 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-OS 1 900 270 und US-PS 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und 30 Pentaerythrit.

Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylenterephthalate.

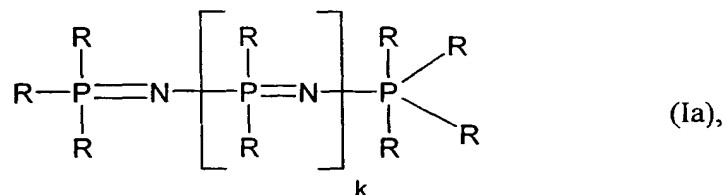
Mischungen von Polyalkylenterephthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylenterephthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylenterephthalat.

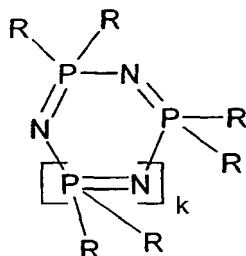
Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

Die Polyalkylenterephthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (s. z.B. Kunststoff-Handbuch, Band VIII, S. 695 ff., Carl-Hanser-Verlag, München 1973).

### Komponente D

Phosphazene gemäß Komponente D welche gemäß der vorliegenden Erfindung eingesetzt werden, sind lineare Phosphazene gemäß Formel (Ia) und cyclische Phosphazene gemäß Formel (Ib)





(Ib),

wobei R und k die oben angegebene Bedeutung haben.

5 Beispielhaft seien genannt:

Propoxyphosphazen, Phenoxyphosphazen, Methylphenoxyphosphazen, Aminophosphazen und Fluoralkylphosphazene.

Bevorzugt ist Phenoxyphosphazen.

10

Die Phosphazene können allein oder als Mischung eingesetzt werden. Der Rest R kann immer gleich sein oder 2 oder mehr Reste in den Formeln (Ia) und (Ib) können verschieden sein.

15

Die Phosphazene und deren Herstellung sind beispielsweise in EP-A 728 811, DE-A 1 961 668 und WO 97/40092 beschrieben.

### Komponente E

20

Die Komponente E umfaßt feinsteilige anorganische Pulver.

25

Die erfindungsgemäß zum Einsatz kommenden feinsteiligen anorganischen Pulver E bestehen vorzugsweise aus wenigstens einer polaren Verbindung von einem oder mehreren Metallen der 1. bis 5. Hauptgruppe oder 1. bis 8. Nebengruppe des Periodensystems, bevorzugt der 2. bis 5. Hauptgruppe oder 4. bis 8. Nebengruppe, besonders bevorzugt der 3. bis 5. Hauptgruppe oder 4. bis 8. Nebengruppe mit wenig-

stens einem Element ausgewählt aus Sauerstoff, Wasserstoff, Schwefel, Phosphor, Bor, Kohlenstoff, Stickstoff oder Silicium.

5 Bevorzugte Verbindungen sind beispielsweise Oxide, Hydroxide, wasserhaltige Oxide, Sulfate, Sulfite, Sulfide, Carbonate, Carbide, Nitrate, Nitrite, Nitride, Borate, Silikate, Phosphate, Hydride, Phosphite oder Phosphonate.

10 Bevorzugt bestehen die feinstteiligen anorganischen Pulver aus Oxiden, Phosphaten, Hydroxiden, vorzugsweise aus  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZnS}$ , Böhmit,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Aluminiumphosphate, Eisenoxide, ferner  $\text{TiN}$ ,  $\text{WC}$ ,  $\text{AlO}(\text{OH})$ ,  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ , Eisenoxide,  $\text{NaSO}_4$ , Vanadiumoxide, Zinkborat, Silicate wie Al-Silikate, Mg-Silikate, ein-, zwei-, dreidimensionale Silikate. Mischungen und dotierte Verbindungen sind ebenfalls verwendbar.

15 Desweiteren können diese nanoskaligen Partikel mit organischen Molekülen oberflächenmodifiziert sein, um eine bessere Verträglichkeit mit den Polymeren zu erzielen. Auf diese Weise lassen sich hydrophobe oder hydrophile Oberflächen erzeugen.

20 Besonders bevorzugt sind hydrathaltige Aluminiumoxide, z.B. Böhmit oder  $\text{TiO}_2$ .

Die durchschnittlichen Teilchendurchmesser der Nanopartikel sind kleiner gleich 200 nm, bevorzugt kleiner gleich 150 nm, insbesondere 1 bis 100 nm.

25 Teilchengröße und Teilchendurchmesser bedeutet immer den mittleren Teilchendurchmesser  $d_{50}$ , ermittelt durch Ultrazentrifugmessungen nach W. Scholtan et al., Kolloid-Z. und Z. Polymere 250 (1972), S. 782-796.

30 Das anorganische Pulver wird in Mengen von 0,5 bis 40, vorzugsweise 1 bis 25, besonders bevorzugt von 2 bis 15 Gew.-%, bezogen auf das thermoplastische Material in die thermoplastische Formmasse eingearbeitet.

Die anorganischen Verbindungen können als Pulver, Pasten, Sole Dispersionen oder Suspensionen vorliegen. Durch Ausfällen können aus Dispersionen, Sole oder Suspensionen Pulver erhalten werden.

5

Die Pulver können nach üblichen Verfahren in die thermoplastischen Formmassen eingearbeitet werden, beispielsweise durch direktes Kneten oder Extrudieren von Formmassen und den feinstteiligen anorganischen Pulvern. Bevorzugte Verfahren stellen die Herstellung eines Masterbatch, z.B. in Flammenschutzadditiven und wenigstens einer Komponente der erfindungsgemäßen Formmassen in Monomeren oder Lösungsmitteln, oder die Cofällung von einer thermoplastischen Komponente und den feinstteiligen anorganischen Pulvern, z.B. durch Cofällung einer wäßrigen Emulsion und den feinstteiligen anorganischen Pulvern dar, gegebenenfalls in Form von Dispersionen, Suspensionen, Pasten oder Solen der feinstteiligen anorganischen Materialien.

15

### **Komponente F**

Die fluorierten Polyolefine F sind hochmolekular und besitzen Glasübergangstemperaturen von über -30°C, in der Regel von über 100°C, Fluorgehalte, vorzugsweise von 65 bis 76, insbesondere von 70 bis 76 Gew.-%, mittlere Teilchendurchmesser  $d_{50}$  von 0,05 bis 1 000, vorzugsweise 0,08 bis 20  $\mu\text{m}$ . Im allgemeinen haben die fluorierten Polyolefine F eine Dichte von 1,2 bis 2,3  $\text{g/cm}^3$ . Bevorzugte fluorierte Polyolefine F sind Polytetrafluorethylen, Polyvinylidenfluorid, Tetrafluorethylen/Hexafluorpropylen- und Ethylen/Tetrafluorethylen-Copolymerisate. Die fluorierten Polyolefine sind bekannt (vgl. "Vinyl and Related Polymers" von Schildknecht, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1962, Seite 484-494; "Fluorpolymers" von Wall, Wiley-Interscience, John Wiley & Sons, Inc., New York, Band 13, 1970, Seite 623-654; "Modern Plastics Encyclopedia", 1970-1971, Band 47, Nr. 10 A, Oktober 1970, Mc Graw-Hill, Inc., New York, Seite 134 und 774; "Modern Plastica Encyclo-

20

25

30

pedia", 1975-1976, Oktober 1975, Band 52, Nr. 10 A, Mc Graw-Hill, Inc., New York, Seite 27, 28 und 472 und US-PS 3 671 487, 3 723 373 und 3 838 092).

Sie können nach bekannten Verfahren hergestellt werden, so beispielsweise durch  
5 Polymerisation von Tetrafluorethylen in wäßrigem Medium mit einem freie Radikale bildenden Katalysator, beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Ammoniumperoxidisulfat bei Drucken von 7 bis 71 kg/cm<sup>2</sup> und bei Temperaturen von 0 bis 200°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20 bis 100°C. (Nähere Einzelheiten s. z. B. US-Patent 2 393 967). Je nach Einsatzform kann die Dichte dieser Materialien zwischen 1,2 und  
10 2,3 g/cm<sup>3</sup>, die mittlere Teilchengröße zwischen 0,5 und 1 000 µm liegen.

Erfindungsgemäß bevorzugte fluorierte Polyolefine F sind Tetrafluorethylenpolymerisate mit mittleren Teilchendurchmesser von 0,05 bis 20 µm, vorzugsweise 0,08 bis 10 µm, und eine Dichte von 1,2 bis 1,9 g/cm<sup>3</sup> und werden vorzugsweise in Form  
15 einer koagulierten Mischung von Emulsionen der Tetrafluorethylenpolymerisate F mit Emulsionen der Pffropfpolymerisate B eingesetzt.

Geeignete, in Pulverform einsetzbare fluorierte Polyolefine F sind Tetrafluorethylenpolymerisate mit mittleren Teilchendurchmesser von 100 bis 1 000 µm und Dichten von 2,0 g/cm<sup>3</sup> bis 2,3 g/cm<sup>3</sup>.  
20

Zur Herstellung einer koagulierten Mischung aus B und F wird zuerst eine wäßrige Emulsion (Latex) eines Pffropfpolymerisates B mit einer feinteiligen Emulsion eines Tetrafluorethylenpolymerisates F vermischt; geeignete Tetrafluorethylenpolymerisat-  
25 Emulsionen besitzen üblicherweise Feststoffgehalte von 30 bis 70 Gew.-%, insbesondere von 50 bis 60 Gew.-%, vorzugsweise von 30 bis 35 Gew.-%.

Die Mengenangabe bei der Beschreibung der Komponente B kann den Anteil des Pffropfpolymerisats für die koagulierte Mischung aus Pffropfpolymerisat und fluoriertem Polyolefinen einschließen.  
30

In der Emulsionsmischung liegt das Gleichgewichtsverhältnis Ppropfpolymerisat B zum Tetrafluorethylenpolymerisat F bei 95:5 bis 60:40. Anschließend wird die Emulsionsmischung in bekannter Weise koaguliert, beispielsweise durch Sprühtrocknen, Gefriertrocknung oder Koagulation mittels Zusatz von anorganischen oder organischen Salzen, Säuren, Basen oder organischen, mit Wasser mischbaren Lösemitteln, wie Alkoholen, Ketonen, vorzugsweise bei Temperaturen von 20 bis 150°C, insbesondere von 50 bis 100°C. Falls erforderlich, kann bei 50 bis 200°C, bevorzugt 70 bis 100°C, getrocknet werden.

10 Geeignete Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsionen sind handelsübliche Produkte und werden beispielsweise von der Firma DuPont als Teflon® 30 N angeboten.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können wenigstens eines der üblichen Additive, wie Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Anmtistatika, Stabilisatoren sowie Farbstoffe und Pigmente enthalten.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können bis zu 35 Gew.-%, bezogen auf die Gesamt-Formmasse, eines weiteren, gegebenenfalls synergistisch wirkenden Flamm-  
schutzmittels enthalten. Beispielfhaft werden als weitere Flammenschutzmittel organische Phosphorverbindungen wie beispielsweise beschrieben in EP-A 363 608, EP-A 345 522 und EP-A 640 655, organische Halogenverbindungen wie Decabrombisphenylether, Tetrabrombisphenol, anorganische Halogenverbindungen wie Ammoniumbromid, Stickstoffverbindungen, wie Melamin, Melaminformaldehyd-Harze, anorganische Hydroxidverbindungen wie Mg-, Al-Hydroxid, anorganische Verbindungen wie Antimonoxide, Bariummetaborat, Hydroxoantimonat, Zirkonoxid, Zirkonhydroxid, Molybdenoxid, Ammoniummolybdat, Zinkborat, Ammoniumborat, Bariummetaborat, Talk, Silikat, Siliziumdioxid und Zinnoxid sowie Siloxanverbindungen genannt.

30 Die erfindungsgemäßen Formmassen enthaltend die Komponenten A bis F und gegebenenfalls weitere bekannte Zusätze wie Stabilisatoren, Farbstoffen, Pigmenten,

Gleit- und Entformungsmitteln, Nukleiermittel sowie Antistatika, werden hergestellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert und schmelzextrudiert, wobei die  
5 Komponente F vorzugsweise in Form der bereits erwähnten koagulierten Mischung eingesetzt wird.

Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur)  
10 als auch bei höherer Temperatur.

Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen eignen sich aufgrund ihrer ausgezeichneten Flammfestigkeit und Wärmeformbeständigkeit sowie ihren guten Eigenschaften wie Bindenahtfestigkeit und ESC-Verhalten (Spannungsrißbeständigkeit)  
15 keit) zur Herstellung von Formkörpern jeglicher Art, insbesondere solchen mit erhöhten Anforderungen an Bruchbeständigkeit.

Die Formmassen der vorliegenden Erfindung können zur Herstellung von Formkörpern jeder Art verwendet werden. Insbesondere können Formkörper durch Spritzguß  
20 hergestellt werden. Beispiele für herstellbare Formkörper sind: Gehäuseteile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte wie Saftpresen, Kaffeemaschinen, Mixer, für Büromaschinen, wie Monitore, Drucker, Kopierer oder Abdeckplatten für den Bausektor und Teile für den Kfz-Sektor. Sie sind außerdem auf dem Gebiet der Elektrotechnik einsetzbar, weil sie sehr gute elektrische Eigenschaften haben.

25 Weiterhin können die erfindungsgemäßen Formmassen beispielsweise zur Herstellung von folgenden Formkörpern bzw. Formteilen verwendet werden:

Innenausbauteile für Schinenfahrzeuge, Radkappen, Gehäuse von Kleintransformatoren enthaltenden Elektrogeräten, Gehäuse für Geräte zur Informationsverbreitung  
30 und -Übermittlung, Gehäuse und Verkleidung für medizinische Zwecke, Massagegeräte und Gehäuse dafür, Spielfahrzeuge für Kinder, Flächige Wandelemente,



Gehäuse für Sicherheitseinrichtungen, Heckspoiler, Wärmeisolierte Transportbehälter, Vorrichtung zur Haltung oder Versorgung von Kleintieren, Formteile für Sanitär- und Badeausrüstungen, Abdeckgitter für Lüfteröffnungen, Formteile für Garten- und Gerätehäuser, Gehäuse für Gartengeräte.

5

Eine weitere Form der Verarbeitung ist die Herstellung von Formkörpern durch Tiefziehen aus vorher hergestellten Platten oder Folien.

10

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist daher auch die Verwendung der erfindungsgemäßen Formmassen zur Herstellung von Formkörpern jeglicher Art, vorzugsweise der oben genannten, sowie die Formkörper aus den erfindungsgemäßen Formmassen.

**Beispiele****Komponente A**

- 5      Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,252, gemessen in CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> als Lösungsmittel bei 25°C und einer Konzentration von 0,5 g/100 ml.

**Komponente B**

- 10      Pfropfpolymerisat von 40 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 73:27 auf 60 Gew.-Teile teilchenförmigen vernetzten Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser  $d_{50} = 0,28 \mu\text{m}$ ), hergestellt durch Emulsionspolymerisation.

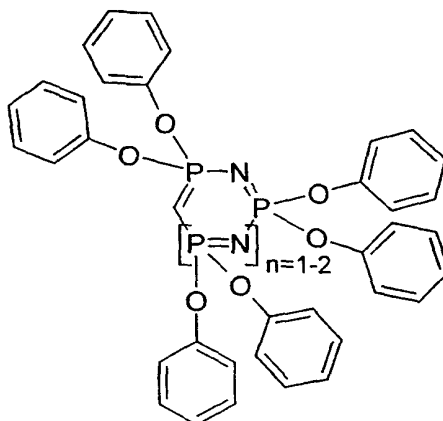
15

**Komponente C**

- 20      Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit einem Styrol/Acrylnitril-Gewichtsverhältnis von 72:28 und einer Grenzviskosität von 0,55 dl/g (Messung in Dimethylformamid bei 20°C).

**Komponente D**

Phenoxyphosphazen der Formel



Handelsprodukt: P-3800 der Firma Nippon Soda CoLtd, Japan

### Komponente E

5

Pural® 200, ein Aluminiumoxidhydroxid (Fa. Condea, Hamburg, Deutschland), mittlere Teilchengröße ca. 50 nm.

### Komponente F

10

15

Tetrafluorethylenpolymerisat als koagulierte Mischung aus einer SAN-Pfropfpolymerisat-Emulsion gemäß o.g. Komponente B in Wasser und einer Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsion in Wasser. Das Gewichtsverhältnis Pfropfpolymerisat B zum Tetrafluorethylenpolymerisat E in der Mischung ist 90 Gew.-% zu 10 Gew.-%. Die Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsion besitzt einen Feststoffgehalt von 60 Gew.-%, der mittlere Teilchendurchmesser liegt zwischen 0,05 und 0,5 µm. Die SAN-Pfropfpolymerisat-Emulsion besitzt einen Feststoffgehalt von 34 Gew.-% und einen mittleren Latexteilchendurchmesser von  $d_{50} = 0,28 \mu\text{m}$ .

### Herstellung von F

Die Emulsion des Tetrafluorethylenpolymerisats (Teflon 30 N der Fa. DuPont) wird mit der Emulsion des SAN-Pfropfpolymerisats B vermischt und mit 1,8 Gew.-%, bezogen auf Polymerfeststoff, phenolischer Antioxidantien stabilisiert. Bei 85 bis 95°C wird die Mischung mit einer wäßrigen Lösung von  $\text{MgSO}_4$  (Bittersalz) und Essigsäure bei pH 4 bis 5 koaguliert, filtriert und bis zur praktischen Elektrolytfreiheit gewaschen, anschließend durch Zentrifugation von der Hauptmenge Wasser befreit und danach bei 100°C zu einem Pulver getrocknet. Dieses Pulver kann dann mit den weiteren Komponenten in den beschriebenen Aggregaten compoundingiert werden.

### Herstellung und Prüfung der erfindungsgemäßen Formmassen

Das Mischen der Komponenten erfolgt auf einem 3-l-Innenknetter. Die Formkörper werden auf einer Spritzgießmaschine Typ Arburg 270 E bei 260°C hergestellt.

Die Bestimmung der Wärmeformbeständigkeit nach Vicat B erfolgt gemäß DIN 53 460 (ISO 306) an Stäben der Abmessung 80 x 10 x 4 mm.

Die Bestimmung der Kerbschlagzähigkeit  $a_k$  wird gemäß ISO 180/1 A durchgeführt.

Zur Ermittlung der Bindenahtfestigkeit wird die Schlagzähigkeit nach DIN 53 453 an der Bindenaht von beidseitig ausgespritzten Prüfkörpern (Verarbeitungstemperatur: 260°C) der Dimension 170 x 10 x 4 mm gemessen.

Das Brandverhalten der Proben wurde nach UL-Subj. 94 V an Stäben der Abmessung 127 x 12,7 x 1,6 mm gemessen, hergestellt auf einer Spritzgußmaschine bei 260°C.

Der UL 94 V-Test wird wie folgt durchgeführt:

- Substanzproben werden zu Stäben der Abmessungen 127 x 12,7 x 1,6 mm geformt. Die Stäbe werden vertikal so montiert, daß die Unterseite des Probekörpers sich 305 mm über einen Streifen Verbandstoff befindet. Jeder Probestab wird einzeln mittels zweier aufeinanderfolgender Zündvorgänge von 10 s Dauer entzündet, die Brenneigenschaften nach jedem Zündvorgang werden beobachtet und danach die Probe bewertet. Zum Entzünden der Probe wird ein Bunsenbrenner mit einer 100 mm (3,8 inch) hohen blauen Flamme von Erdgas mit einer Wärmeeinheit von  $3,73 \times 10^4 \text{ kJ/m}^3$  (1000 BTU per cubic foot) benutzt.
- 10 Die UL 94 V-O-Klassifizierung umfaßt die nachstehend beschriebenen Eigenschaften von Materialien, die gemäß der UL 94 V-Vorschrift geprüft werden. Die Formmassen in dieser Klasse enthalten keine Proben, die länger als 10 s nach jeder Einwirkung der Testflamme brennen; sie zeigen keine Gesamtflamzeit von mehr als 50 s bei der zweimaligen Flammeinwirkung auf jeden Probesatz; sie enthalten keine
- 15 Proben, die vollständig bis hinauf zu der am oberen Ende der Probe befestigten Halteklammer abbrennen; sie weisen keine Proben auf, die die unterhalb der Probe angeordnete Watte durch brennende Tropfen oder Teilchen entzünden; sie enthalten auch keine Proben, die länger als 30 s nach Entfernen der Testflamme glimmen.
- 20 Andere UL 94-Klassifizierungen bezeichnen Proben, die weniger flammwidrig oder weniger selbstverlöschend sind, weil sie flammende Tropfen oder Teilchen abgeben. Diese Klassifizierungen werden mit UL 94 V-1 und V-2 bezeichnet. N.B. heißt „nicht bestanden“ und ist die Klassifizierung von Proben, die eine Nachbrennzeit von  $\geq 30 \text{ s}$  aufweisen.
- 25 Das Spannungsrißverhalten (ESC-Verhalten) wurde an Stäben der Abmessung 80 x 10 x 4 mm, Verarbeitungstemperatur 260°C, untersucht. Als Testmedium wurde eine Mischung aus 60 Vol.-% Toluol und 40 Vol.-% Isopropanol verwendet. Die Probekörper wurden mittels einer Kreisbogenschablone vorgedehnt (Vordehnung in Prozent) und bei Raumtemperatur im Testmedium gelagert. Das Spannungsrißverhalten
- 30

wurde über die Rißbildung bzw. den Bruch in Abhängigkeit von der Vordehnung im Testmedium beurteilt.

5 Eine Zusammenstellung der Eigenschaften der erfindungsgemäßen Formmassen ist in der nachfolgenden Tabelle 1 gegeben:

10 Durch Verwendung der Kombination aus Phosphazen und feinstteiligem anorganischen Pulver werden Formmassen mit erhöhter Wärmeformbeständigkeit erhalten, die sich durch sehr gute mechanische Eigenschaften wie Kerbschlagzähigkeit, Spannungsrißbeständigkeit und Bindenahtfestigkeit auszeichnen. Überraschenderweise wird der gute Flammenschutz der erfindungsgemäßen Formmassen bei deutlich reduzierten Mengen an Phosphazen erreicht.

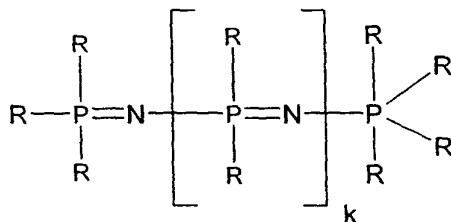
**Tabelle:** Formmassen und ihre Eigenschaften

15

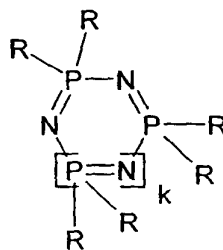
	1 (Vgl)	2	3
<b>Komponenten [Gew.-Tle]</b>			
A	66,7	66,7	66,7
B	7,3	7,3	7,3
C	9,4	9,4	9,4
D	15,0	13,0	11,0
E	-	1,0	1,0
F	4,2	4,2	4,2
<b>Eigenschaften</b>			
$a_k$ [kJ/m <sup>2</sup> ]	56	58	59
Vicat B 120 [°C]	101	104	110
$a_n$ (Bindenaht) [kJ/m <sup>2</sup> ]	15,8	17,8	17,8
<b>ESC-Verhalten</b>			
Bruch bei $\epsilon_x$ [%]	1,6	1,8	2,0
UL 94 V 1,6 mm	V-0	V-0	V-0

**Patentansprüche**

1. Thermoplastische Formmassen enthaltend Polycarbonat und/oder Polyester-  
carbonat, Pfropfpolymerisat, Phosphazene und anorganisches Pulver mit  
5 einem durchschnittlichen Teilchendurchmesser kleiner gleich 200 nm.
2. Thermoplastische Formmassen gemäß Anspruch 1 enthaltend
  - A) 40 bis 99 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder Polyester-  
carbonat,  
10
  - B) 0,5 bis 60 Gew.-Teile Pfropfpolymerisat von
    - B.1) 5 bis 95 Gew.-% eines oder mehrerer Vinylmonomeren auf  
15
    - B.2) 95 bis 5 Gew.-% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit einer  
Glasumwandlungstemperatur  $< 10^{\circ}\text{C}$ ,
  - C) 0 bis 45 Gew.-Teile mindestens eines thermoplastischen Polymers,  
20 ausgewählt aus der Gruppe der Vinyl(co)polymerisate und Polyalky-  
lenterephthalate,
  - D) 0,1 bis 50 Gew.-Teile mindestens einer Komponente, ausgewählt aus  
25 der Gruppe der Phosphazene der Formeln



(Ia),



(Ib),

worin

5 R jeweils gleich oder verschieden ist und für Amino, jeweils  
gegebenenfalls halogeniertes C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-  
Alkoxy, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen  
substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl, oder  
C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl steht,

10 k für 0 oder eine Zahl von 1 bis 15 steht,

E) 0,5 bis 40 Gew.-Teile feinteiliges anorganisches Pulver mit einem  
durchschnittlichen Teilchendurchmesser von kleiner gleich 200 nm,  
und

15

F) 0 bis 5 Gew.-Teile eines fluorierten Polyolefins.

3. Formmassen gemäß Anspruch 1 und 2, enthaltend

20 60 bis 98,5 Gew.-Teile A,

1 bis 40 Gew.-Teile B,

0 bis 30 Gew.-Teile C,

1 bis 18 Gew.-Teile D,

1 bis 25 Gew.-Teile E,

25

0,15 bis 1 Gew.-Teile F.



4. Formmassen gemäß Anspruch 1 bis 3, enthaltend 2 bis 25 Gew.-Teile C.
5. Formmassen gemäß der Ansprüche 1 bis 4, enthaltend 5 bis 25 Gew.-Teile D.
- 5 6. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Vinylmonomere B.1 Gemische sind aus
  - B.1.1 50 bis 99 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten und/oder Methacrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester und
  - 10 B.1.2 1 bis 50 Gew.-Teilen Vinylcyanide und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester und/oder Derivate ungesättigter Carbonsäuren.
- 15 7. Formmassen gemäß der vorhergehender Ansprüche, wobei die Pfropfgrundlage ausgewählt ist aus mindestens einem Kautschuk aus der Gruppe der Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren- und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuk.
- 20 8. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Komponente D ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Propoxyphosphazen, Phenoxyphosphazen, Methylphenoxyphosphazen, Aminophosphazen und Fluoralkylphosphazene.
- 25 9. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Komponente E aus wenigstens einer polaren Verbindung von einem oder mehreren Metallen der 1. bis 5. Hauptgruppe oder 1 bis 8. Nebengruppe des Periodensystems mit wenigstens einem Element ausgewählt aus Sauerstoff, Wasserstoff, Schwefel, Phosphor, Bor, Kohlenstoff, Stickstoff oder Silicium ausgewählt ist.
- 30 10. Formmassen gemäß Anspruch 9, wobei Komponente E aus wenigstens einer polaren Verbindung von einem oder mehreren Metallen der 2. bis 5. Haupt-

gruppe oder 4. bis 8. Nebengruppe mit wenigstens einem Element ausgewählt aus Sauerstoff, Wasserstoff, Schwefel, Phosphor, Bor, Kohlenstoff, Stickstoff oder Silicium ausgewählt ist.

- 5      11.    Formmassen gemäß Anspruch 10, wobei Komponente E aus wenigstens einer polaren Verbindung von einem oder mehreren Metallen der 3. bis 5 Hauptgruppe oder 4. bis 8 Nebengruppe des Periodensystems mit wenigstens einem Element ausgewählt aus Sauerstoff, Wasserstoff, Schwefel, Phosphor, Bor, Kohlenstoff, Stickstoff oder Silicium ausgewählt ist.
- 10
12.    Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Komponente E ausgewählt ist aus mindestens einem Oxid, Hydroxid, wasserhaltigem Oxid, Sulfat, Sulfit, Sulfid, Carbonat, Carbid, Nitrat, Nitrit, Nitrid, Borat, Silikat, Phosphat, Hydrid, Phosphit und Phosphonat.
- 15
13.    Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Komponente E ausgewählt ist aus Oxiden, Phosphaten und Hydroxiden.
- 20
14.    Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Komponente E ausgewählt ist aus  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZnS}$ , Böhmit,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Aluminiumphosphate, Eisenoxide,  $\text{TiN}$ ,  $\text{WC}$ ,  $\text{AlO}(\text{OH})$ ,  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ , Eisenoxide,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , Vanadiunoxide, Zinkborat, Silicate wie Al-Silikate, Mg-Silikate, ein-, zwei-, dreidimensionale Silikate, deren Mischungen und dotierte Verbindungen.
- 25
15.    Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Komponente E ausgewählt ist aus hydrathaltigen Aluminiumoxiden,  $\text{TiO}_2$  und Mischungen davon.

16. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, enthaltend wenigstens ein Additiv ausgewählt aus der Gruppe der Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Antistatika, Stabilisatoren, Farbstoffe und Pigmente.
- 5 17. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, enthaltend weitere Flammschutzmittel, welche verschieden sind von Komponente D.
18. Verfahren zur Herstellung von Formmassen gemäß Anspruch 1, wobei die Komponenten A bis E und gegebenenfalls weiteren Zusätzen vermischt und  
10 schmelzcompoundiert werden.
19. Verwendung der Formmassen gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Formkörpern.
- 15 20. Formkörper, hergestellt aus Formmassen gemäß der Ansprüche 1 bis 17.
21. Gehäuseteile gemäß Anspruch 20.



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In: tional Application No

PCT/EP 99/04059

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C08K5/5399 C08L69/00 C08K13/02 //(C08K13/02,3:00,5:5399)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C08K C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 417 839 A (STAMICARBON) 20 March 1991 (1991-03-20) page 3, line 51 - line 57; claims 1,5,6 ---	1,9,14
A	EP 0 761 746 A (BAYER AG) 12 March 1997 (1997-03-12) page 6, line 49 - line 55; examples ---	1,9-15
A,P	WO 99 07791 A (BAYER AG) 18 February 1999 (1999-02-18) claims 1,7-9 ---	1,9-15
A	EP 0 791 634 A (MITSUBISHI) 27 August 1997 (1997-08-27) page 8, line 9 - line 27; example 21 page 8, line 39 - line 44; claims 1,4 --- -/--	1,9,14, 15



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

6 October 1999

Date of mailing of the international search report \*

13/10/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Engel, S

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In: International Application No

PCT/EP 99/04059

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A, P	WO 99 07782 A (BAYER AG) 18 February 1999 (1999-02-18) page 17, line 30 -page 18, line 19; claims 1-3 ---	1,9-15
A	WO 97 40092 A (BASF AG) 30 October 1997 (1997-10-30) cited in the application page 17, line 27 - line 31; claims 1,8 -----	1,9,20

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/04059

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0417839 A	20-03-1991	US 4946885 A DD 297656 A JP 3100064 A KR 9310924 B	07-08-1990 16-01-1992 25-04-1991 17-11-1993
EP 0761746 A	12-03-1997	DE 19530200 A US 5849827 A	20-02-1997 15-12-1998
WO 9907791 A	18-02-1999	DE 19734666 A AU 9255798 A	18-02-1999 01-03-1999
EP 791634 A	27-08-1997	JP 10077396 A US 5770644 A	24-03-1998 23-06-1998
WO 9907782 A	18-02-1999	DE 19734661 A AU 9070898 A	18-02-1999 01-03-1999
WO 9740092 A	30-10-1997	DE 19615230 A EP 0894114 A	23-10-1997 03-02-1999





# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In nationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04059

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C08K5/5399 C08L69/00 C08K13/02 //(C08K13/02,3:00,5:5399)

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C08K C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 417 839 A (STAMICARBON) 20. März 1991 (1991-03-20) Seite 3, Zeile 51 - Zeile 57; Ansprüche 1,5,6	1,9,14
A	EP 0 761 746 A (BAYER AG) 12. März 1997 (1997-03-12) Seite 6, Zeile 49 - Zeile 55; Beispiele	1,9-15
A,P	WO 99 07791 A (BAYER AG) 18. Februar 1999 (1999-02-18) Ansprüche 1,7-9	1,9-15
A	EP 0 791 634 A (MITSUBISHI) 27. August 1997 (1997-08-27) Seite 8, Zeile 9 - Zeile 27; Beispiel 21 Seite 8, Zeile 39 - Zeile 44; Ansprüche 1,4	1,9,14, 15
	--- -/-	



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

6. Oktober 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

13/10/1999

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Engel, S

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In nationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04059

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A,P	<p>WO 99 07782 A (BAYER AG)  18. Februar 1999 (1999-02-18)  Seite 17, Zeile 30 -Seite 18, Zeile 19;  Ansprüche 1-3</p> <p style="text-align: center;">---</p>	1,9-15
A	<p>WO 97 40092 A (BASF AG)  30. Oktober 1997 (1997-10-30)  in der Anmeldung erwähnt  Seite 17, Zeile 27 - Zeile 31; Ansprüche  1,8</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1,9,20

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

In tionales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04059

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0417839 A	20-03-1991	US 4946885 A DD 297656 A JP 3100064 A KR 9310924 B	07-08-1990 16-01-1992 25-04-1991 17-11-1993
EP 0761746 A	12-03-1997	DE 19530200 A US 5849827 A	20-02-1997 15-12-1998
WO 9907791 A	18-02-1999	DE 19734666 A AU 9255798 A	18-02-1999 01-03-1999
EP 791634 A	27-08-1997	JP 10077396 A US 5770644 A	24-03-1998 23-06-1998
WO 9907782 A	18-02-1999	DE 19734661 A AU 9070898 A	18-02-1999 01-03-1999
WO 9740092 A	30-10-1997	DE 19615230 A EP 0894114 A	23-10-1997 03-02-1999



RA



**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<p><b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> :</b> <b>C08K 5/5399, C08L 69/00</b></p>	<p><b>A1</b></p>	<p><b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/00543</b></p> <p><b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 6. Januar 2000 (06.01.00)</p>		
<table style="width: 100%; border: none;"> <tr> <td style="width: 50%; vertical-align: top; padding: 5px;"> <p><b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/04061</p> <p><b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 12. Juni 1999 (12.06.99)</p> <p><b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 28 538.8      26. Juni 1998 (26.06.98)      DE</p> <p><b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).</p> <p><b>(72) Erfinder; und</b></p> <p><b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ECKEL, Thomas [DE/DE]; Pfauenstrasse 51, D-41540 Dormagen (DE). ZOBEL, Michael [DE/DE]; Linnicher Strasse 10, D-40547 Düsseldorf (DE). WITTMANN, Dieter [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Strasse 41, D-51375 Leverkusen (DE).</p> <p><b>(74) Gemeinsamer Vertreter:</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).</p> </td> <td style="width: 50%; vertical-align: top; padding: 5px;"> <p><b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p> </td> </tr> </table>			<p><b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/04061</p> <p><b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 12. Juni 1999 (12.06.99)</p> <p><b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 28 538.8      26. Juni 1998 (26.06.98)      DE</p> <p><b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).</p> <p><b>(72) Erfinder; und</b></p> <p><b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ECKEL, Thomas [DE/DE]; Pfauenstrasse 51, D-41540 Dormagen (DE). ZOBEL, Michael [DE/DE]; Linnicher Strasse 10, D-40547 Düsseldorf (DE). WITTMANN, Dieter [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Strasse 41, D-51375 Leverkusen (DE).</p> <p><b>(74) Gemeinsamer Vertreter:</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).</p>	<p><b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p>
<p><b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/04061</p> <p><b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 12. Juni 1999 (12.06.99)</p> <p><b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 28 538.8      26. Juni 1998 (26.06.98)      DE</p> <p><b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).</p> <p><b>(72) Erfinder; und</b></p> <p><b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ECKEL, Thomas [DE/DE]; Pfauenstrasse 51, D-41540 Dormagen (DE). ZOBEL, Michael [DE/DE]; Linnicher Strasse 10, D-40547 Düsseldorf (DE). WITTMANN, Dieter [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Strasse 41, D-51375 Leverkusen (DE).</p> <p><b>(74) Gemeinsamer Vertreter:</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).</p>	<p><b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p>			
<p><b>(54) Title:</b> FLAME-RESISTANT POLYCARBONATE ABS MOULDING MATERIALS</p> <p><b>(54) Bezeichnung:</b> FLAMMWIDRIGE POLYCARBONAT/ABS-FORMMASSEN</p> <p><b>(57) Abstract</b></p> <p>The present invention relates to thermoplastic polycarbonate moulding materials containing phosphazenes and special graft polymers that are produced by means of redox initiator systems. The inventive moulding materials are characterized by substantially improved mechanical properties.</p> <p><b>(57) Zusammenfassung</b></p> <p>Die vorliegende Erfindung betrifft thermoplastische Polycarbonat-Formmassen, die Phosphazene und spezielle, mittels Redox-Initiatorsystemen hergestellte Pfropfpolymerisate enthalten und sich durch wesentlich verbesserte mechanische Eigenschaften auszeichnen.</p>				

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

**Flammwidrige Polycarbonat/ABS-Formmassen**

Die vorliegende Erfindung betrifft thermoplastische Polycarbonat-Formmassen, die  
5 Phosphazene und spezielle, mittels Redox-Initiatorsystemen hergestellte Pffropfpoly-  
merisate enthalten und sich durch wesentlich verbesserte mechanische Eigenschaften  
auszeichnen.

10 In DE-A-196 16 968 werden polymerisierbare Phosphazenderivate, Verfahren zu  
deren Herstellung und deren Verwendung als aushärtbare Bindemittel für Lacke, Be-  
schichtungen, Füllmittel, Spachtelmassen, Klebstoffe, Formteile oder Folien be-  
schrieben.

15 In WO 97/40 092 werden flammgeschützte Formmassen aus thermoplastischen Poly-  
meren und unsubstituierten Phosphazenen vom Typ  $PN_{n-x}H_{1-y}$  beschrieben.

20 EP-A-728 811 beschreibt eine thermoplastische Mischung bestehend aus aromati-  
schem Polycarbonat, Pffropfcopolymer, Copolymer und Phosphazenen, welche gute  
Flammschutzeigenschaften, Schlagzähigkeit und Wärmeformbeständigkeit auf-  
weisen.

Eine Kombination aus Phosphazenen und den speziellen Pffropfpolymerisaten wird  
weder in WO 97/40 092 noch in EP-A-728 811 beschrieben.

25 In EP-A-315 868 (= US-A-4.937.285) werden Formmassen aus thermoplastischen  
Polycarbonaten beschrieben, die Redoxpffropfpolymerisate enthalten. Der Zusatz von  
Phosphazenen wird nicht erwähnt.

30 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Bereitstellung von flammwidrigen Poly-  
carbonat/ABS-Formmassen mit sehr guten mechanischen Eigenschaften wie Kerb-  
schlagzähigkeit, Spannungsrißbeständigkeit, Flammfestigkeit und Bindenahtfestig-

keit. Dieses Eigenschaftsspektrum wird besonders bei Anwendungen im Bereich Datentechnik, wie beispielsweise für dünnwandige Gehäuse von Monitoren, Druckern u.a. gefordert.

- 5 Es wurde nun gefunden, daß PC/ABS-Formmassen, die Phosphazene und ein mittels eines Redox-Initiatorsystems hergestelltes Pfropfpolymerisat enthalten, die gewünschten Eigenschaften aufweisen.

Gegenstand der Erfindung sind daher thermoplastische Formmassen enthaltend

10

A) 40 bis 99, vorzugsweise 60 bis 98,5 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder Polyestercarbonat

15

B) 0,5 bis 60, vorzugsweise 1 bis 40, insbesondere 2 bis 25 Gew.-Teile Pfropfpolymerisat, dadurch gekennzeichnet, daß die Pfropfpolymerisate B aus

B.1) 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-% eines oder mehrerer Vinylmonomeren und

20

B.2) 95 bis 5, vorzugsweise 20 bis 70 Gew.% eines oder mehrerer teilchenförmigen Dienkautschuke mit einer Glasumwandlungstemperatur  $<10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $<0^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt  $<-20^{\circ}\text{C}$ , die durch Emulsionspolymerisation hergestellt sind, wobei zur Pfropfpolymerisation ein Initiatorsystem aus einem organischen Hydroperoxid und Ascorbinsäure verwendet wird,

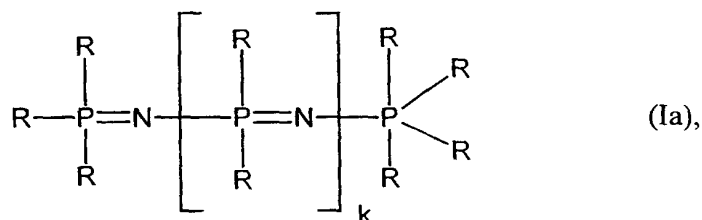
25

C) 0 bis 45, vorzugsweise 0 bis 30, besonders bevorzugt 2 bis 25 Gew.-Teile mindestens eines thermoplastischen Polymers ausgewählt aus der Gruppe der thermoplastischen Vinyl(co)polymerisate und Polyalkylenterephthalate,

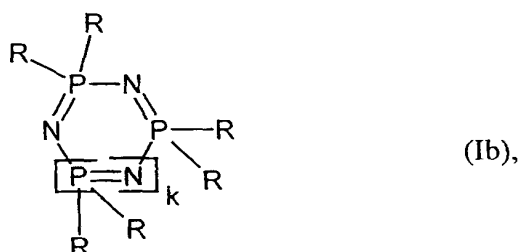
30



- D) 0,1 bis 50, vorzugsweise 2 bis 35, insbesondere 5 bis 25 Gew.-Teile mindestens einer Komponente, ausgewählt aus der Gruppe der Phosphazene der Formeln



5



worin

R jeweils gleich oder verschieden ist und für Amino, jeweils gegebenenfalls halogeniertes, vorzugsweise mit Fluor halogeniertes C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl, oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkoxy, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl, vorzugsweise Phenyl oder Naphthyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryloxy, vorzugsweise Phenoxy, Naphthyloxy, oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl, vorzugsweise Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, steht,

15

k für 0 oder eine Zahl von 1 bis 15, vorzugsweise für eine Zahl von 1 bis 10 steht,

20

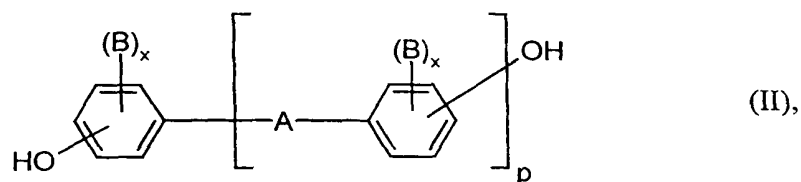
- E) 0 bis 5 Gew.-Teile, vorzugsweise 0,1 bis 1 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 0,1 bis 0,5 Gew.-Teile fluoriertes Polyolefin.

**Komponente A**

Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und/oder aromatische Polyester-  
 5 estercarbonate gemäß Komponente A sind literaturbekannt oder nach literaturbe-  
 kannten Verfahren herstellbar (zur Herstellung aromatischer Polycarbonate siehe bei-  
 spielsweise Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Interscience  
 Publishers, 1964 sowie die DE-AS 1 495 626, DE-OS 2 232 877, DE-OS 2 703 376,  
 DE-OS 2 714 544, DE-OS 3 000 610, DE-OS 3 832 396; zur Herstellung aromati-  
 10 scher Polyester- carbonate z. B. DE-OS 3 077 934).

Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z.B. durch Umsetzung von  
 Diphenolen mit Kohlensäurehalogeniden, vorzugsweise Phosgen und/oder mit aro-  
 matischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalo-  
 15 geniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung  
 von Kettenabbrechern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Ver-  
 wendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispiels-  
 weise Triphenolen oder Tetraphenolen.

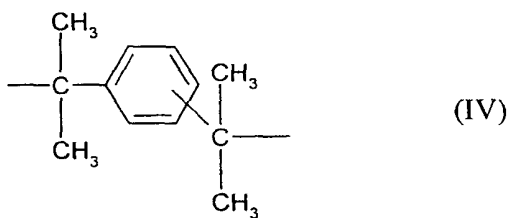
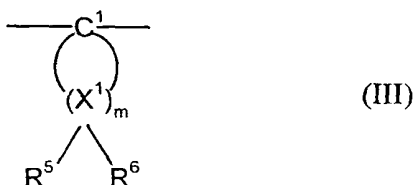
20 Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen  
 Polyester- carbonate sind vorzugsweise solche der Formel (II)



wobei

A eine Einfachbindung, C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkylen, C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyliden, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyliden, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen, an das weitere aromatische gegebenenfalls Heteroatome enthaltende Ringe kondensiert sein können,

5 oder ein Rest der Formel (III) oder (IV)



10 B jeweils C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom

x jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,

15 p 1 oder 0 sind, und

R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> für jedes X<sup>1</sup> individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl,

20 X<sup>1</sup> Kohlenstoff und

m eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten, mit der Maßgabe, daß an mindestens einen Atom X<sup>1</sup>, R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> gleichzeitig Alkyl sind.

Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenole, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und  $\alpha,\alpha$ -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bisphenol-A, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3.3.5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenyl-sulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten Derviate wie beispielsweise 2,2-Bis(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

Insbesondere bevorzugt ist 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A).

Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden.

Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate geeignete Kettenabbrecher sind beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-OS 2 842 005 oder Monoalkylphenol bzw. Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-tert.-Butylphenol, p-iso-Octylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol und 2-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol. Die Menge an einzusetzenden Kettenabbrechern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol-%, und 10 Mol-%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate haben mittlere Gewichtsmittelmolekulargewichte ( $M_w$ , gemessen z. B. durch Ultrazentrifuge oder Streulichtmessung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise 20 000 bis 80 000.

5 Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate können in bekannter Weise verzweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol-%, bezogen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an dreifunktionellen oder mehr als dreifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei und mehr phenolischen Gruppen.

10

Geeignet sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate. Zur Herstellung erfindungsgemäßer Copolycarbonate gemäß Komponente A können auch 1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.% (bezogen auf die Gesamtmenge an einzusetzenden Diphenolen) Polydiorganosiloxane mit Hydroxy-aryloxy-Endgruppen  
15 eingesetzt werden. Diese sind bekannt (s. beispielsweise US-Patent 3 419 634) bzw. nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxanhaltiger Copolycarbonate wird z. B. in DE-OS 3 334 782 beschrieben.

20

Bevorzugte Polycarbonate sind neben den Bisphenol-A-Homopolycarbonaten die Copolycarbonate von Bisphenol-A mit bis zu 15 Mol-%, bezogen auf die Molsummen an Diphenolen, anderen als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannten Diphenole, insbesondere 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

25

Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Polyester-carbonate sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Terephthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbonsäure.

Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

30

Bei der Herstellung von Polyestercarbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen als bifunktionelles Säurederivat mitverwendet.

5 Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyestercarbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls durch  $C_1$ - $C_{22}$ -Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische  $C_2$ - $C_{22}$ -Monocarbonsäurechloride in Betracht.

10 Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol-%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf Mole Diphenole und Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrecher auf Mole Dicarbonsäuredichloride.

15 Die aromatischen Polyestercarbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

Die aromatischen Polyestercarbonate können sowohl linear als auch in bekannter Weise verzweigt sein (siehe dazu ebenfalls DE-OS 2 940 024 und DE-OS 3 007 934).

20 Als Verzweigungsmittel können beispielsweise 3- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3',4,4'-Benzophenon-tetracarbonsäuretrichlorid, 1,4,5,8-Napthalintetracarbonsäuretrichlorid oder Pyromellithsäuretrichlorid, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% (bezogen auf eingesetzte Dicarbonsäuredichloride) oder 3- oder mehrfunktionelle Phenole, wie Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2,4,4-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-hydroxyphenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, 25 Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, 2,6-Bis(2-hydroxy-5-methyl-benzyl)-4-methylphenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Tetra-(4-[4-hydroxy-

30

phenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis[4,4'-dihydroxytri-phenyl)-methyl]-benzol, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% bezogen auf eingesetzte Diphenole verwendet werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.

In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis zu 100 Mol-%, insbesondere bis zu 80 Mol-%, besonders bevorzugt bis zu 50 Mol-%, bezogen auf die Summe an Estergruppen und Carbonatgruppen. Sowohl der Ester- als auch der Carbonatanteil der aromatischen Polyestercarbonate kann in Form von Blöcken oder statistisch verteilt im Polykondensat vorliegen.

Die relative Lösungsviskosität ( $\eta_{rel}$ ) der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate liegt im Bereich 1,18 bis 1,4, vorzugsweise 1,22 bis 1,3 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polycarbonat oder Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-Lösung bei 25°C).

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch untereinander eingesetzt werden.

### **Komponente B**

Die Komponente B umfaßt ein oder mehrere Pfropfpolymerisate von

B.1 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-%, wenigstens eines Vinylmonomeren auf

B.2 95 bis 5, vorzugsweise 70 bis 20 Gew.-% einer oder mehrerer teilchenförmiger Dienkautschuke mit Glasübergangstemperaturen  $<10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $<0^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt  $<-20^{\circ}\text{C}$ ,

die durch Emulsionspolymerisation mittels eines Initiatorsystems aus organischem Hydroperoxid und Ascorbinsäure hergestellt werden.

5 Die Pfropfgrundlage B.2 hat im allgemeinen eine mittlere Teilchengröße ( $d_{50}$ -Wert) von 0,05 bis 5  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 0,10 bis 0,6  $\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt 0,20 bis 0,40  $\mu\text{m}$ .

Monomere B.1 sind vorzugsweise Gemische aus

10

B.1.1 50 bis 99 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten (wie beispielsweise Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder Methacrylsäure-( $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ )-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat) und

15

B.1.2 1 bis 50 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile wie Acrylnitril und Methacrylnitril) und/oder (Meth)Acrylsäure-( $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ )-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

20

Bevorzugte Monomere B.1.1 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere B.1.2 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und Methylmethacrylat.

25

Besonders bevorzugte Monomere sind B.1.1 Styrol und B.1.2 Acrylnitril.

30

Bevorzugte Pfropfgrundlagen B.2 sind Dienkautschuke (z. B. auf Basis Butadien, Isopren etc.) oder Gemische von Dienkautschuken oder Copolymerisate von Dienkautschuken oder deren Gemischen mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren



(z.B. gemäß B.1.1 und B.1.2), mit der Maßgabe, daß die Glasübergangstemperatur der Komponente B.2 unterhalb  $<10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $<0^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt  $<-10^{\circ}\text{C}$  liegt.

5      Besonders bevorzugt ist reiner Polybutadienkautschuk.

Besonders bevorzugt sind Pfropfpolymerisate aus

10      a)      40 bis 90 Gew.-% teilchenförmigen Dienkautschuks eines mittleren Teilchendurchmessers von 0,1 bis 0,6  $\mu\text{m}$  und

b)      60 bis 10 Gew.-% Styrol, Acrylnitril, Methylmethacrylat oder Mischungen daraus durch Emulsions-Pfropfpolymerisation,

15      die dadurch gekennzeichnet ist, daß man zur Pfropfpolymerisation ein Initiatorsystem aus einem organischen Hydroperoxid und Ascorbinsäure unter Erzielung einer Pfropfausbeute von  $>60$  Gew.-%, vorzugsweise  $>75$  Gew.-%, insbesondere  $>85$  Gew.-% (bezogen auf eingesetzte Monomere B.1 bzw. b) verwendet.

20      Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform führt man die Pfropfpolymerisation der Monomeren a) in wäßriger Emulsion in Gegenwart einer Emulsion des Kautschukpolymerisates b) bei Temperaturen von 40 bis  $70^{\circ}\text{C}$ , insbesondere 50 bis  $70^{\circ}\text{C}$ , durch, unter Einsatz eines Initiatorsystems aus organischem Hydroperoxid (I) und Ascorbinsäure (II), wobei im allgemeinen 0,3 bis 1,5 Gew.-Teile (I) und 0,1 bis 1  
25      Gewichtsteil (II), jeweils bezogen auf 100 Gew.-Teile Pfropfmonomere, eingesetzt werden und das Gewichtsverhältnis (I):(II) 0,3 bis 15, insbesondere 1 bis 10, vorzugsweise 3 bis 8, ist (vgl. DE-A-37 08 913 (= US-A-4.859.744) und EP-A-315 868 (= US-A-4.937.285)).

30      Die Kautschuke sind im allgemeinen partiell vernetzt und besitzen Gelgehalte von 10 bis 90 Gew.-%, insbesondere von 40 bis 80 Gew.-%, und sind teilchenförmig mit

mittleren Teilchengrößen ( $d_{50}$ -Werte) von 0,1 bis 0,6  $\mu\text{m}$ , insbesondere 0,2 bis 0,4  $\mu\text{m}$ . Solche teilchenförmigen Kautschuke sind bekannt. Sie werden durch Emulsionspolymerisation hergestellt und liegen meist als Latices vor.

- 5 Die Pfropfpolymerisate werden in wäßriger Emulsion durch Polymerisation der Monomeren auf einen in wäßriger Emulsion vorliegenden Kautschuk hergestellt werden. Dabei werden üblicherweise oberflächenaktive Hilfsmittel eingesetzt, Emul-
- 10 gatoren oder Dispergatoren sowie gegebenenfalls Zusätze, um bestimmte pH-Werte und Elektrolytgehalte bei der Pfropfpolymerisation einzustellen. Unter Umständen kann man die Emulsions-Pfropfpolymerisation auch ohne Emulgatorzusatz durch-
- führen, insbesondere dann, wenn man mit geringen Monomermengen arbeitet, be-  
zogen auf die Kautschukmenge, oder wenn die in der Kautschukemulsion (Latex)  
schon selbst vorliegenden Mengen an Emulgator bereits ausreichen, um die Pfropf-  
polymerisation der Monomeren im Emulsionszustand bei genügender Emulsions-  
15 stabilität zu gewährleisten.

- Besonders geeignet sind anionische Emulgatoren, vorzugsweise Alkali-Salze von  
Fettsäuren, Harzsäuren, disproportionierten Harzsäuren, Alkylsulfonsäuren, Aryl-  
sulfonsäuren. Sie werden in Mengen bis zu 5 Gew.-%, vorzugsweise bis zu  
20 2,5 Gew.-%, bezogen auf die zu polymerisierenden Monomeren, eingesetzt.

- Geeignete Hydroperoxide sind beispielsweise Cumolhydroperoxid, tert.-Butylhydro-  
peroxid, Wasserstoffperoxid, vorzugsweise Cumolhydroperoxid und tert.-Butylhydro-  
peroxid, also Hydroperoxide mit großen Halbwertszeiten.

- 25 Eine wäßrige Emulsion eines partiell vernetzten Dienkautschuks wird diskonti-  
nuierlich oder kontinuierlich in wäßriger Emulsion bepfropft; bei Polymerisations-  
temperaturen von 40 bis 70°C, insbesondere 50 bis 70°C, wird die Kautschuk-  
emulsion mit den Pfropfmonomeren sowie gegebenenfalls zusätzlichem Emulgator  
und Hydroperoxid sowie Ascorbinsäurelösungen versetzt. Dabei sind die Mengen-  
30 verhältnisse, wie oben beschrieben, einzuhalten. In Ausnahmefällen können in die

Polymerisation als weitere Komponente des Startersystems katalytisch geringe Mengen Schwermetallkationen, insbesondere Fe, zugefügt werden, insbesondere dann, wenn Dienkautschukemulsionen verwendet werden müssen, die selbst schon größere Mengen Komplexierungsagenzien enthalten. Normalerweise wird in dem Verfahren ohne Zusatz von Eisenionen gearbeitet; diese Methode ist bevorzugt und erlaubt technisch vorteilhaft die Gewinnung praktisch schwermetallfreier- bzw. -armer Pfropfpolymerisate, da sich bekanntermaßen derartige Metallspuren nachteilig auf anwendungstechnische Eigenschaften von Kunststoffen auswirken können. Das Verfahren arbeitet mit wäßrigen Lösungen von Ascorbinsäure und wäßrigen Lösungen von Hydroperoxid; vorteilhaft ist es, nicht genügend wasserlösliche Hydroperoxide, wie Cumolhydroxid, in Form einer wäßrigen Emulsion in das Polymerisationssystem einzuspeisen. In solchen Emulsionen wird vorteilhaft der gleiche Emulgator eingesetzt wie in der Pfropfpolymerisation.

Das Hydroperoxid und die Ascorbinsäure können portionsweise oder kontinuierlich in die Pfropfpolymerisation eindosiert werden. In einer bevorzugten Variante wird das Hydroperoxid anteilmäßig mit dem zu bepfpfenden Kautschuk in den Reaktoren vorgelegt; die Pfropfmonomeren sowie die restliche Ascorbinsäure, Hydroperoxid und gegebenenfalls Emulgator werden mit fortschreitender Polymerisation der Pfropfmonomeren separat in den Reaktor eingespeist.

Die Mengen Hydroperoxid und Ascorbinsäure sind kritisch. Bei Überdosierung von Hydroperoxid und/oder Ascorbinsäure wird die Pfropfpolymerisation beeinträchtigt. Die Pfropfausbeute geht zurück; das Molekulargewicht des gepfropften und des freien Harzes wird geringer; Unter- oder Überschreitung der Mengen an Hydroperoxid und Ascorbinsäure kann sich außerdem empfindlich auf Monomerumsatz und Emulsionsstabilität auswirken, so daß die technische Realisierung der Pfropfpolymerisation unmöglich wird. Um die Durchführung des Verfahrens, die Struktur der Pfropfpolymerisate und deren physikalische Eigenschaften zu optimieren, sind bei der Pfropfpolymerisation eine Temperatur von 40 bis 70°C und die oben angegebenen Hydroperoxid/Ascorbinsäuremengen unbedingt einzuhalten.

Bei der Pfropfpolymerisation bis zu Monomerumsätzen von größer 90 Gew.-%, insbesondere größer 98 Gew.-%, fallen lagerstabile Pfropfpolymeremulsionen mit Polymerisatgehalten von 25 bis 50 Gew.-% an; das Pfropfpolymerisat selbst läßt sich gut  
5 aus den Emulsionen durch gekannte Koagulations-Verfahren (z.B. mittels Säuren oder Salzen) isolieren. Will man die Pfropfpolymerisate mit thermoplastischen Harzen kombinieren, die selbst als Emulsion vorliegen, so kann man die Pfropfpolymerisatemulsion mit der Harzemulsion mischen und gemeinsam koagulieren.

10 Der Gelgehalt der Pfropfgrundlage B.2 wird bei 25°C in einem geeigneten Lösungsmittel bestimmt (M. Hoffmann, H. Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme-Verlag, Stuttgart 1977).

Die mittlere Teilchengröße  $d_{50}$  ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen  
15 jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugennmessung (W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782-1796) bestimmt werden.

### Komponente C

20

Die Komponente C umfaßt ein oder mehrere thermoplastische Vinyl (co)polymerisate C.1 und/oder Polyalkylenterephthalate C.2.

Geeignet sind als (Co)Polymerisate C.1 Polymerisate von mindestens einem Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile),  
25 (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester, ungesättigte Carbonsäuren sowie Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren. Insbesondere geeignet sind (Co)Polymerisate aus

30 C.1.1 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 80 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten wie beispielsweise Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-

Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder Methacrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)-Alkylester wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat), und

5 C.1.2 1 bis 50, vorzugsweise 20 bis 40 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile) wie Acrylnitril und Methacrylnitril und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder ungesättigte Carbonsäuren (wie Maleinsäure) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

10

Die (Co)Polymerisate C.1 sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei.

Besonders bevorzugt ist das Copolymerisat aus C.1.1 Styrol und C.1.2 Acrylnitril.

15 Die (Co)Polymerisate gemäß C.1 sind bekannt und lassen sich durch radikalische Polymerisation, insbesondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation herstellen. Die (Co)Polymerisate gemäß Komponente C.1 besitzen vorzugsweise Molekulargewichte M<sub>w</sub> (Gewichtsmittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation) zwischen 15 000 und 200 000.

20

Die Polyalkylenterephthalate der Komponente C.2 sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethylestern oder Anhydriden, und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen Diolen sowie Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

25

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate enthalten mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Dicarbonsäurekomponente Terephthalsäurereste und mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Mol.-%, bezogen auf die Diolkomponente Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-Reste.

30

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Iso-  
5 phthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexan-diessigsäure.

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 Mol-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol-%, andere aliphatische  
10 Diole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloalipahische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-( $\beta$ -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-  
15 hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(4- $\beta$ -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-OS 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-  
20 wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-OS 1 900 270 und US-PS 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

25 Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylenterephthalate.

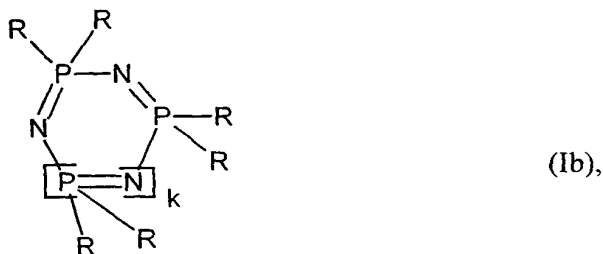
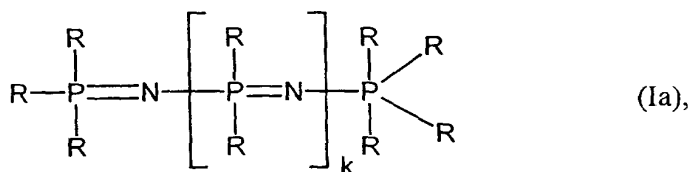
Mischungen von Polyalkylenterephthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylenterephthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylenterephthalat.

- 5 Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

- 10 Die Polyalkylenterephthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (s. z.B. Kunststoff-Handbuch, Band VIII, S. 695 ff., Carl-Hanser-Verlag, München 1973).

### Komponente D

- 15 Phosphazene gemäß Komponente D, welche gemäß der vorliegenden Erfindung eingesetzt werden, sind lineare Phosphazene gemäß Formel (Ia) und cyclische Phosphazene gemäß Formel (Ib)



20

wobei

R und k die oben angegebene Bedeutung haben.

Beispielhaft seien genannt:

Propoxyphosphazen, Phenoxyphosphazen, Methylphenoxyphosphazen, Aminophosphazen und Fluoralkylphosphazene.

5

Bevorzugt ist Phenoxyphosphazen.

Die Phosphazene können allein oder als Mischung eingesetzt werden. Der Rest R kann immer gleich sein oder 2 oder mehr Reste in den Formeln (Ia) und (Ib) können  
10 verschieden sein.

Die Phosphazene und deren Herstellung sind beispielsweise in EP-A-728 811, DE-A-1 961 668 und WO 97/40 092 beschrieben.

15

### **Komponente E**

Die fluorierten Polyolefine E sind hochmolekular und besitzen Glasübergangstemperaturen von über -30°C, in der Regel von über 100°C, Fluorgehalte, vorzugsweise von 65 bis 76, insbesondere von 70 bis 76 Gew.-%, mittlere Teilchendurchmesser  $d_{50}$   
20 von 0,05 bis 1 000, vorzugsweise 0,08 bis 20  $\mu\text{m}$ . Im allgemeinen haben die fluorierten Polyolefine E eine Dichte von 1,2 bis 2,3  $\text{g/cm}^3$ . Bevorzugte fluorierte Polyolefine E sind Polytetrafluorethylen, Polyvinylidenfluorid, Tetrafluorethylen- (Hexafluorpropylen- und Ethylen/Tetrafluorethylen-Copolymerisate. Die fluorierten Polyolefine sind bekannt (vgl. "Vinyl and Related Polymers" von Schildknecht, John  
25 Wiley & Sons, Inc., New York, 1962, Seite 484-494; "Fluorpolymers" von Wall, Wiley-Interscience, John Wiley & Sons, Inc., New York, Band 13, 1970, Seite 623-654; "Modern Plastics Encyclopedia", 1970-1971, Band 47, Nr. 10 A, Oktober 1970, Mc Graw-Hill, Inc., New York, Seite 134 und 774; "Modern Plastica Encyclopedia", 1975-1976, Oktober 1975, Band 52, Nr. 10 A, Mc Graw-Hill, Inc.,  
30 New York, Seite 27, 28 und 472 und US-PS 3 671 487, 3 723 373 und 3 838 092).



Sie können nach bekannten Verfahren hergestellt werden, so beispielsweise durch Polymerisation von Tetrafluorethylen in wäßrigem Medium mit einem freie Radikale bildenden Katalysator, beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Ammoniumperoxidisulfat bei Drucken von 7 bis 71 kg/cm<sup>2</sup> und bei Temperaturen von 0 bis 200°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20 bis 100°C. (Nähere Einzelheiten s. z.B. US-Patent 2 393 967). Je nach Einsatzform kann die Dichte dieser Materialien zwischen 1,2 und 2,3 g/cm<sup>3</sup>, die mittlere Teilchengröße zwischen 0,5 und 1 000 µm liegen.

Erfindungsgemäß bevorzugte fluorierte Polyolefine E sind Tetrafluorethylenpolymerisate mit mittleren Teilchendurchmesser von 0,05 bis 20 µm, vorzugsweise 0,08 bis 10 µm, und eine Dichte von 1,2 bis 1,9 g/cm<sup>3</sup> und werden vorzugsweise in Form einer koagulierten Mischung von Emulsionen der Tetrafluorethylenpolymerisate E mit Emulsionen der Pffropfpolymerisate B eingesetzt.

Geeignete, in Pulverform einsetzbare fluorierte Polyolefine E sind Tetrafluorethylenpolymerisate mit mittleren Teilchendurchmesser von 100 bis 1 000 µm und Dichten von 2,0 g/cm<sup>3</sup> bis 2,3 g/cm<sup>3</sup>.

Zur Herstellung einer koagulierten Mischung aus B und E wird zuerst eine wäßrige Emulsion (Latex) eines Pffropfpolymerisates B mit einer feinteiligen Emulsion eines Tetrafluorethylenpolymerisates E vermischt; geeignete Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsionen besitzen üblicherweise Feststoffgehalte von 30 bis 70 Gew.-%, insbesondere von 50 bis 60 Gew.-%, vorzugsweise von 30 bis 35 Gew.-%.

Die Mengenangabe bei der Beschreibung der Komponente B kann den Anteil des Pffropfpolymerisats für die koagulierte Mischung aus Pffropfpolymerisat und fluoriertem Polyolefinen einschließen.

In der Emulsionsmischung liegt das Gleichgewichtsverhältnis Pffropfpolymerisat B zum Tetrafluorethylenpolymerisat E bei 95:5 bis 60:40. Anschließend wird die Emulsionsmischung in bekannter Weise koaguliert, beispielsweise durch Sprühtrock-

nen, Gefriertrocknung oder Koagulation mittels Zusatz von anorganischen oder organischen Salzen, Säuren, Basen oder organischen, mit Wasser mischbaren Löse-  
mitteln, wie Alkoholen, Ketonen, vorzugsweise bei Temperaturen von 20 bis 150°C,  
insbesondere von 50 bis 100°C. Falls erforderlich, kann bei 50 bis 200°C, bevorzugt  
5 70 bis 100°C, getrocknet werden.

Geeignete Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsionen sind handelsübliche Produkte  
und werden beispielsweise von der Firma DuPont als Teflon® 30 N angeboten.

10 Die erfindungsgemäßen Formmassen können weingstens eines der üblichen Addi-  
tive, wie Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Anmtistatika, Stabilisatoren  
sowie Farbstoffe und Pigmente enthalten.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können bis zu 35 Gew.-%, bezogen auf die  
15 Gesamt-Formmasse, eines weiteren, gegebenenfalls synergistisch wirkenden Flamm-  
schutzmittels enthalten. Beispielhaft werden als weitere Flammenschutzmittel organi-  
sche Halogenverbindungen wie Decabrombisphenylether, Tetrabrombisphenol, anor-  
ganische Halogenverbindungen wie Ammoniumbromid, Stickstoffverbindungen, wie  
Melamin, Melaminformaldehyd-Harze, anorganische Hydroxidverbindungen wie  
20 Mg-, Al-Hydroxid, anorganische Verbindungen wie Antimonoxide, Bariummeta-  
borat, Hydroxoantimonat, Zirkonoxid, Zirkonhydroxid, Molybdenoxid, Ammonium-  
molybdat, Zinkborat, Ammoniumborat, Bariummetaborat, Talk, Silikone, Silizium-  
dioxid und Zinnoxid sowie Siloxanverbindungen genannt.

25 Die erfindungsgemäßen Formmassen enthaltend die Komponenten A bis E und ge-  
gebenenfalls weiteren bekannten Zusätzen wie Stabilisatoren, Farbstoffen, Pigmen-  
ten, Gleit- und Entformungsmitteln, Nukleiermittel sowie Antistatika, werden herge-  
stellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei  
Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern,  
30 Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert und schmelzextrudiert,

wobei die Komponente E vorzugsweise in Form der bereits erwähnten koagulierten Mischung eingesetzt wird.

5 Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

10 Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen eignen sich aufgrund ihrer ausgezeichneten Flammfestigkeit und ihren sehr guten mechanischen Eigenschaften zur Herstellung von Formkörpern jeglicher Art, insbesondere solchen mit erhöhten Anforderungen an Bruchbeständigkeit.

15 Die Formmassen der vorliegenden Erfindung können zur Herstellung von Formkörpern jeder Art verwendet werden. Insbesondere können Formkörper durch Spritzguß hergestellt werden. Beispiele für herstellbare Formkörper sind: Gehäuseteile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte wie Saftpressen, Kaffeemaschinen, Mixer, für Büro-

20

Weiterhin können die erfindungsgemäßen Formmassen beispielsweise zur Herstellung von folgenden Formkörpern bzw. Formteilen verwendet werden:

1. Innenausbauteile für Schienenfahrzeuge (FR)
- 25 2. Radkappen
3. Gehäuse von Kleintransformatoren enthaltenden Elektrogeräten
4. Gehäuse für Geräte zur Informationsverbreitung und -Übermittlung
5. Gehäuse und Verkleidung für medizinische Zwecke
6. Massagegeräte und Gehäuse dafür
- 30 7. Spielfahrzeuge für Kinder
8. Flächige Wandelemente

9. Gehäuse für Sicherheitseinrichtungen
  10. Heckspoiler
  11. Wärmeisolierte Transportbehältnisse
  12. Vorrichtung zur Haltung oder Versorgung von Kleintieren
  - 5 13. Formteile für Sanitär- und Badeausrüstungen
  14. Abdeckgitter für Lüfteröffnungen
  15. Formteile für Garten- und Gerätehäuser
  16. Gehäuse für Gartengeräte
- 10 Eine weitere Form der Verarbeitung ist die Herstellung von Formkörpern durch Tiefziehen aus vorher hergestellten Platten oder Folien.
- Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist daher auch die Verwendung der erfindungsgemäßen Formmassen zur Herstellung von Formkörpern jeglicher Art,
- 15 vorzugsweise der oben genannten, sowie die Formkörper aus den erfindungsgemäßen Formmassen.

**Beispiele****Komponente A**

- 5      Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,252, gemessen in CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> als Lösungsmittel bei 25°C und einer Konzentration von 0,5 g/100 ml.

10     **Komponente B**

Pfropfgrundlage:

- 15     B.2    Emulsion eines partiell vernetzten, grobteiligen Polybutadiens mit einem mittleren Teilchendurchmesser von 0,40 µm (d<sub>50</sub>-Wert), einem Gelgehalt von 89 Gew.-%. Die Emulsion enthält 50 Gew.-% Polymerisatfeststoff.

Herstellung der Pfropfpolymerisate:

- 20     Ba)    Pfropfpolymerisat aus 55 Gew.-% Dienkautschuk (B.2) und 45 Gew.-% SAN-Copolymer gemäß DE-A-37 08 913.

- 25     Eine Mischung aus 200 Gew.-Teilen des Latex (B.2) und 149 Gew.-Teilen Wasser werden in einem Reaktor vorgelegt und auf 60 bis 62°C aufgeheizt. Bei dieser Temperatur werden folgende zwei Lösungen bzw. Emulsionen in nachfolgender Reihenfolge in den Reaktor eingegeben:

1.      0,0836 Gew.-Teile Cumolhydroperoxid  
         6,9600 Gew.-Teile Wasser  
30      0,0600 Gew.-Teile Na-Salz von C<sub>14</sub>-C<sub>16</sub>-Alkylsulfonsäuren

2. 0,0557 Gew.-Teile Ascorbinsäure  
6,9600 Gew.-Teile Wasser.

5 Danach werden nachstehende Zuläufe innerhalb von 4 Stunden bei einer Innentemperatur von 60 bis 62°C in den Reaktor unter Rühren eindosiert:

- Z1) 39,05 Gew.-Teile Wasser  
4,00 Gew.-Teile Na-Salz der disproportionierten Abietinsäure  
3,10 Gew.-Teile 1n-Natronlauge  
10 0,62 Gew.-Teile Cumolhydroperoxid

- Z2) 59 Gew.-Teile Styrol  
23 Gew.-Teile Acrylnitril  
15 Z3) 39,800 Gew.-Teile Wasser  
0,105 Gew.-Teile Ascorbinsäure

20 Anschließend wird bei 60 bis 62°C 6 Stunden lang auspolymerisiert. Der Monomerumsatz ist größer als 97 Gew.-%.

Nach Stabilisierung mit 1,2 Gew.-Teilen phenolischem Antioxidanz, pro 100 Gew.-Teile Pfropfpolymer, wird das Pfropfpolymer durch Koagulation mit einer Essigsäure/Mg-Sulfat-Mischung isoliert, gewaschen und zu einem Pulver getrocknet.

25 Die SAN-Pfropfung verlief mit einer Pfropfausbeute von 89 Gew.-%.

30 Die Pfropfausbeute wurde bestimmt durch fraktionierende Entmischung mit den entmischenden Flüssigkeiten Dimethylformamid/Methylcyclohexan in der Ultrazentrifuge und durch Ermittlung der Mengen und der chemischen

Zusammensetzung der so erhaltenen Fraktionen (siehe R. Kuhn, Makromol-Chemie 177, 1525 (1976)).

- 5      Bb)    Pfropfpolymerisat aus 55 Gew.-% Dienkautschuk (B.2) und 45 Gew.-%  
SAN-Copolymer  
(Vergleichsbeispiel)

In einem Reaktor werden vorgelegt:

- 10      1 500 Gew.-Teile der Emulsion B.2 und 1 030 Gew.-Teile Wasser. Nach Auf-  
heizen auf 65°C wird eine Starterlösung aus 3 Gew.-Teilen Kaliumper-  
oxidisulfat in 50 Gew.-Teilen Wasser eingespeist. Anschließend werden fol-  
gende zwei Lösungen innerhalb von 6 Stunden bei 65°C in den Reaktor ein-  
gespeist:

15

1.      442 Gew.-Teile Styrol  
         172 Gew.-Teile Acrylnitril

20

2.      1 000 Gew.-Teile Wasser  
         13 Gew.-Teile Na-Salz der disproportionierten Abietinsäure  
         10 Gew.-Teile in-Natronlauge

25

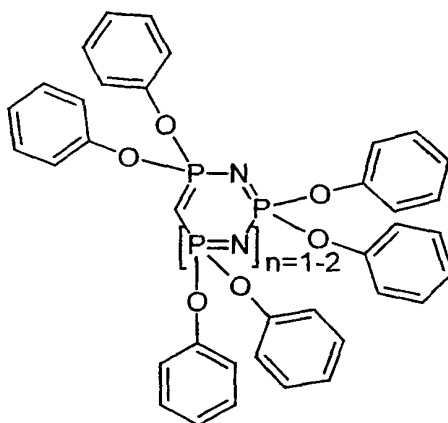
Im Anschluß daran wird durch Nachrühren bei 65°C innerhalb von 4 Stunden  
auspolymerisiert. Der Monomerumsatz ist größer als 98 Gew.-%. Die Stabili-  
sierung und Isolierung des Pfropfpolymerisats erfolgt analog Vorschrift Ba).  
Die SAN-Pfropfung verlief mit einer Pfropfausbeute von 55 Gew.-%. Die Be-  
stimmung der Pfropfausbeute erfolgte wie für Ba).

**Komponente C**

5 Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit einem Styrol/Acrylnitril-Gewichtsverhältnis von 72:28 und einer Grenzviskosität von 0,55 dl/g (Messung in Dimethylformamid bei 20°C).

**Komponente D**

Phenoxyphosphazen der Formel



10

Handelsprodukt: P-3800, Fa. Nippon Soda Co., Ltd., Japan

**Komponente E**

15 Tetrafluorethylenpolymerisat als koagulierte Mischung aus einer SAN-Pfropfpolymerisat-Emulsion gemäß o.g. Komponente B in Wasser und einer Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsion in Wasser. Das Gewichtsverhältnis Pfropfpolymerisat B zum Tetrafluorethylenpolymerisat E in der Mischung ist 90 Gew.-% zu 10 Gew.-%. Die Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsion besitzt einen Feststoffgehalt von 60 Gew.-%,  
20 der mittlere Teilchendurchmesser liegt zwischen 0,05 und 0,5 µm. Die SAN-Pfropfpolymerisat-Emulsion besitzt einen Feststoffgehalt von 34 Gew.-% und einen mittleren Latexteilchendurchmesser von  $d_{50} = 0,28 \mu\text{m}$ .



### Herstellung von E

Die Emulsion des Tetrafluorethylenpolymerisats (Teflon 30 N der Fa. DuPont) wird mit der Emulsion des SAN-Pfropfpolymerisats B vermischt und mit 1,8 Gew.-%, bezogen auf Polymerfeststoff, phenolischer Antioxidantien stabilisiert. Bei 85 bis 95°C wird die Mischung mit einer wäßrigen Lösung von  $MgSO_4$  (Bittersalz) und Essigsäure bei pH 4 bis 5 koaguliert, filtriert und bis zur praktischen Elektrolytfreiheit gewaschen, anschließend durch Zentrifugation von der Hauptmenge Wasser befreit und danach bei 100°C zu einem Pulver getrocknet. Dieses Pulver kann dann mit den weiteren Komponenten in den beschriebenen Aggregaten compoundiert werden.

### Herstellung und Prüfung der erfindungsgemäßen Formmassen

Das Mischen der Komponenten erfolgt auf einem 3-l-Innenknetter. Die Formkörper werden auf einer Spritzgießmaschine Typ Arburg 270 E bei 260°C hergestellt.

Die Bestimmung der Wärmeformbeständigkeit nach Vicat B erfolgt gemäß DIN 53 460 (ISO 306) an Stäben der Abmessung 80 x 10 x 4 mm.

Zur Ermittlung der Bindenahtfestigkeit wird die Schlagzähigkeit nach DIN 53 453 an der Bindenaht von beidseitig eingespritzten Prüfkörpern (Verarbeitungstemperatur 260°C) der Dimension 170 x 10 x 4 mm gemessen.

Das Spannungsrißverhalten (ESC-Verhalten) wurde an Stäben der Abmessung 80 x 10 x 4 mm, Verarbeitungstemperatur 260°C, untersucht. Als Testmedium wurde eine Mischung aus 60 Vol.-% Toluol und 40 Vol.-% Isopropanol verwendet. Die Probekörper wurden mittels einer Kreisbogenschablone vorgedehnt (Vordrehnung in Prozent) und bei Raumtemperatur im Testmedium gelagert. Das Spannungsrißverhalten wurde über die Rißbildung bzw. den Bruch in Abhängigkeit von der Vordrehnung im Testmedium beurteilt.

Zusammensetzung und Eigenschaften sind in der folgenden Tabelle 1 zusammengestellt.

**Tabelle: Formmassen und ihre Eigenschaften**

5

	1	2 (Vgl.)
Komponenten [Gew.-Teile]		
A	66,7	66,7
Ba	8,0	-
Bb	-	8,0
C	9,4	9,4
D	12,0	12,0
E	4,2	4,2
Eigenschaften		
$a_k$ (ISO 180/1A) [kJ/m <sup>2</sup> ]	59	48
Vicat B 120 [°C]	107	107
UL 94 V, 1,6 mm	V-O	V-O
$a_n$ Bindenaht [kJ/m <sup>2</sup> ]	16,5	12,2
ESC-Verhalten		
Bruch bei $\epsilon_x$ [%]	2,4	2,0

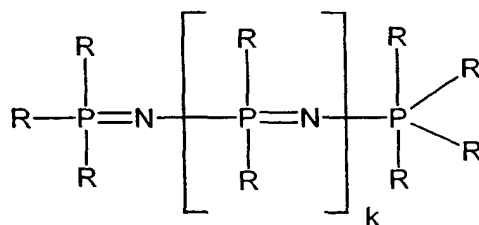
Bei Einsatz des speziellen, mittels eines Redox-Initiatorsystems hergestellten Pfropf-  
 polymerisats in Polycarbonat-Formmassen zeigen sich in Gegenwart von Phenoxy-  
 phosphazen als Flammschutzmittel deutliche Verbesserungen der mechanischen  
 Eigenschaften. Hohe Werte für Kerbschlagzähigkeit, Bindenahtfestigkeit sowie eine  
 gute Spannungsrißbeständigkeit sind Voraussetzungen für einen Einsatz in dünn-  
 wandigen Gehäuseteilen.

10

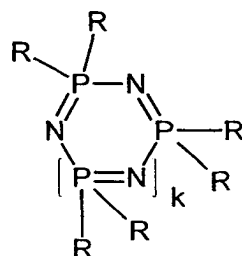
**Patentansprüche**

## 1. Thermoplastische Formmassen enthaltend

- 5 A) 40 bis 99 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder Polyester-carbonat
- B) 0,5 bis 60 Gew.-Teile Pfropfpolymerisat, dadurch gekennzeichnet, daß die Pfropfpolymerisate B aus
- 10 B.1) 5 bis 95 Gew.-% einem oder mehreren Vinylmonomeren und
- B.2) 95 bis 5 Gew.% eines oder mehrerer teilchenförmigen Dienkautschuke mit einer Glasumwandlungstemperatur  $<10^{\circ}\text{C}$ , die durch Emulsionspolymerisation hergestellt sind, wobei zur Pfropfpolymerisation ein Initiatorsystem aus einem organischen Hydroperoxid und Ascorbinsäure verwendet wird,
- 15 C) 0 bis 45 Gew.-Teile mindestens eines thermoplastischen Polymers ausgewählt aus der Gruppe der thermoplastischen Vinyl(co)polymerisate und Polyalkylenterephthalate,
- 20 D) 0,1 bis 50 Gew.-Teile mindestens einer Komponente, ausgewählt aus der Gruppe der Phosphazene der Formeln



(1a),



(Ib),

worin

5 R jeweils gleich oder verschieden ist und für Amino, jeweils gegebenenfalls halogeniertes C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkoxy, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryloxy oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl, steht,

10 k für 0 oder eine Zahl von 1 bis 15 steht,

E) 0 bis 5 Gew.-Teile fluoriertes Polyolefin.

15 2. Formmassen gemäß Anspruch 1, enthaltend

60 bis 98,5 Gew.-Teile A,

1 bis 40 Gew.-Teile B,

0 bis 30 Gew.-Teile C,

2 bis 35 Gew.-Teile D,

20 0,1 bis 1 Gew.-Teile E.

3. Formmassen gemäß Anspruch 1 und 2, enthaltend 2 bis 25 Gew.-Teile C.

4. Formmassen gemäß der Ansprüche 1 bis 3, enthaltend 5 bis 25 Gew.-Teile D.

25

5. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Vinylmonomere B.1 Gemische aus
- 5 B.1.1 50 bis 99 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten und/oder Methacrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester und
- B.1.2 1 bis 50 Gew.-Teilen Vinylcyanide und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester und/oder Derivate ungesättigter Carbonsäuren.
- 10 6. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Pfropfgrundlage ausgewählt ist aus Dienkautschuken oder Gemischen von Dienkautschuken oder Copolymerisaten von Dienkautschuken oder deren Gemischen mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren.
- 15 7. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Pfropfgrundlage ein Polybutadienkautschuk ist.
8. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Pfropfausbeute bei der Polymerisation >60 Gew.-% ist.
- 20 9. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Pfropfausbeute >75 Gew.-% ist.
10. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Pfropfausbeute >85 Gew.-% ist.
- 25 11. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei als Hydroperoxide Cumolhydroperoxid, tert.-Butylhydroperoxid und/oder Wasserstoffperoxid verwendet werden.

12. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, wobei Komponente D ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Propoxyphosphazen, Phenoxyphosphazen, Methylphenoxyphosphazen, Aminophosphazen und Fluoralkylphosphazene.
- 5
13. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, enthaltend wenigstens ein Additiv ausgewählt aus der Gruppe der Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Antistatika, Stabilisatoren, Farbstoffe und Pigmente.
- 10
14. Formmassen gemäß der vorhergehenden Ansprüche, enthaltend weitere Flammschutzmittel, welche verschieden sind von Komponente D.
- 15
15. Verfahren zur Herstellung von Formmassen gemäß Anspruch 1, wobei die Komponenten A bis E und gegebenenfalls weiteren Zusätzen vermischt und schmelzcompoundiert werden.
16. Verwendung der Formmassen gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Formkörpern.
- 20
17. Formkörper, hergestellt aus Formmassen gemäß der Ansprüche 1 bis 15.
18. Gehäuseteile gemäß Anspruch 17.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PC1/EP 99/04061

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 IPC 6 C08K5/5399 C08L69/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
 IPC 6 C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 482 451 A (BAYER AG) 29 April 1992 (1992-04-29) page 4, line 40 - line 48; claims 1,6; examples ---	1,6,11, 15
A	EP 0 315 868 A (BAYER AG) 17 May 1989 (1989-05-17) cited in the application page 4, line 1 - line 15 page 9, line 23 - line 26 claims 1,8,9 ---	1,6,11, 15
A	EP 0 728 811 A (MITSUBISHI CHEM CORP) 28 August 1996 (1996-08-28) cited in the application page 2, line 56 -page 3, line 7; claims 1,4 --- -/--	1,6,12

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 September 1999

Date of mailing of the international search report

06/10/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Engel, S

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PLI/EP 99/04061

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 417 839 A (STAMICARBON) 20 March 1991 (1991-03-20) page 6, line 2 - line 6 ---	1,6,12
A	EP 0 363 608 A (GEN ELECTRIC) 18 April 1990 (1990-04-18) claims 1,6 -----	1,6



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PC1/EP 99/04061

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0482451 A	29-04-1992	DE 4033806 A	30-04-1992
		DE 59107649 D	09-05-1996
		ES 2084748 T	16-05-1996
		JP 5017678 A	26-01-1993
		US 5552465 A	03-09-1996
EP 315868 A	17-05-1989	DE 3738143 A	18-05-1989
		DE 3853765 D	14-06-1995
		ES 2070841 T	16-06-1995
		JP 1165656 A	29-06-1989
		JP 2744031 B	28-04-1998
		US 4937285 A	26-06-1990
EP 0728811 A	28-08-1996	JP 9053009 A	25-02-1997
EP 0417839 A	20-03-1991	US 4946885 A	07-08-1990
		DD 297656 A	16-01-1992
		JP 3100064 A	25-04-1991
		KR 9310924 B	17-11-1993
EP 0363608 A	18-04-1990	NL 8802346 A	17-04-1990
		AU 630629 B	05-11-1992
		AU 4334989 A	18-04-1990
		DE 68912700 D	10-03-1994
		DE 68912700 T	25-08-1994
		ES 2061834 T	16-12-1994
		JP 2115262 A	27-04-1990
		WO 9003417 A	05-04-1990
		US 5204394 A	20-04-1993



# INTERNATIONALLER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PC 1/EP 99/04061

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
IPK 6 C08K5/5399 C08L69/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

**B. RECHERCHIERTE GEBIETE**

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

**C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN**

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 482 451 A (BAYER AG) 29. April 1992 (1992-04-29) Seite 4, Zeile 40 - Zeile 48; Ansprüche 1,6; Beispiele	1,6,11, 15
A	EP 0 315 868 A (BAYER AG) 17. Mai 1989 (1989-05-17) in der Anmeldung erwähnt Seite 4, Zeile 1 - Zeile 15 Seite 9, Zeile 23 - Zeile 26 Ansprüche 1,8,9	1,6,11, 15
A	EP 0 728 811 A (MITSUBISHI CHEM CORP) 28. August 1996 (1996-08-28) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 56 -Seite 3, Zeile 7; Ansprüche 1,4	1,6,12
	-/--	



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"G" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

27. September 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

06/10/1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Engel, S

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 417 839 A (STAMICARBON) 20. März 1991 (1991-03-20) Seite 6, Zeile 2 - Zeile 6 ---	1,6,12
A	EP 0 363 608 A (GEN ELECTRIC) 18. April 1990 (1990-04-18) Ansprüche 1,6 -----	1,6

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PC1/EP 99/04061

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0482451 A	29-04-1992	DE 4033806 A	30-04-1992
		DE 59107649 D	09-05-1996
		ES 2084748 T	16-05-1996
		JP 5017678 A	26-01-1993
		US 5552465 A	03-09-1996
EP 315868 A	17-05-1989	DE 3738143 A	18-05-1989
		DE 3853765 D	14-06-1995
		ES 2070841 T	16-06-1995
		JP 1165656 A	29-06-1989
		JP 2744031 B	28-04-1998
		US 4937285 A	26-06-1990
EP 0728811 A	28-08-1996	JP 9053009 A	25-02-1997
EP 0417839 A	20-03-1991	US 4946885 A	07-08-1990
		DD 297656 A	16-01-1992
		JP 3100064 A	25-04-1991
		KR 9310924 B	17-11-1993
EP 0363608 A	18-04-1990	NL 8802346 A	17-04-1990
		AU 630629 B	05-11-1992
		AU 4334989 A	18-04-1990
		DE 68912700 D	10-03-1994
		DE 68912700 T	25-08-1994
		ES 2061834 T	16-12-1994
		JP 2115262 A	27-04-1990
		WO 9003417 A	05-04-1990
		US 5204394 A	20-04-1993



A.D

PCT/EP99/04061

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents  
United States Patent and Trademark  
Office  
Box PCT  
Washington, D.C.20231  
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year)

01 February 2000 (01.02.00)

International application No.

PCT/EP99/04061

Applicant's or agent's file reference

Le A 33 038

International filing date (day/month/year)

12 June 1999 (12.06.99)

Priority date (day/month/year)

26 June 1998 (26.06.98)

Applicant

ECKEL, Thomas et al

1. The designated Office is hereby notified of its election made:



in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

15 December 1999 (15.12.99)



in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

F. Baechler

Telephone No.: (41-22) 338.83.38





# PCT

## ANTRAG

Der Unterzeichnete beantragt, daß die vorliegende internationale Anmeldung nach dem Vertrag über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens behandelt wird.

Vom Anmeldeamt auszufüllen

Internationales Aktenzeichen

Internationales Anmeldedatum

Name des Anmeldeamts und "PCT International Application"

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts (falls gewünscht)  
(max. 12 Zeichen) Le A 33 038-PC KM

### Feld Nr. I BEZEICHNUNG DER ERFINDUNG

Flammwidrige Polycarbonat/ABS-Formmassen

### Feld Nr. II ANMELDER

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT  
51368 Leverkusen  
DE

☐ Diese Person ist gleichzeitig Erfinder

Telefonnr.:

0214 30 71166

Telefaxnr.:

0214 30 34 82

Fernschreibnr.:

85 101-265byd

Staatsangehörigkeit (Staat):

DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐

alle Bestimmungsstaaten

☒

alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika

☐

nur die Vereinigten Staaten von Amerika

☐

die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

### Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

Eckel, Thomas  
Pfauenstr. 51  
D 41540 Dormagen  
DE

Diese Person ist:

☐ nur Anmelder

☒ Anmelder und Erfinder

☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat):

DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐

alle Bestimmungsstaaten

☐

alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika

☒

nur die Vereinigten Staaten von Amerika

☐

die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

☒ Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf einem Fortsetzungsbblatt angegeben.

### Feld Nr. IV ANWALT ODER GEMEINSAMER VERTRETER; ODER ZUSTELLANSCHRIFT

Die folgende Person wird hiermit bestellt/ist bestellt worden, um für den (die) Anmelder vor den zuständigen internationalen Behörden in folgender Eigenschaft zu handeln als:

☐ Anwalt

☒

gemeinsamer Vertreter

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben.)

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT  
51368 Leverkusen, DE

Telefonnr.:

0214 30 71166

Telefaxnr.:

0214 30 34 82

Fernschreibnr.:

85 101-265byd

☐ Zustellanschrift: Dieses Kästchen ist anzukreuzen, wenn kein Anwalt oder gemeinsamer Vertreter bestellt ist und statt dessen im obigen Feld eine spezielle Zustellanschrift angegeben ist.



## Fortsetzung von Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER

*Wird keines der folgenden Felder benutzt, so sollte dieses Blatt dem Antrag nicht beigelegt werden.*

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

Zobel, Michael  
Linnicher Str. 10  
D 40547 Düsseldorf  
DE

Diese Person ist:

☐ nur Anmelder

☒ Anmelder und Erfinder

☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat):

DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungsstaaten

☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika

☒ nur die Vereinigten Staaten von Amerika

☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

Wittmann, Dieter  
Ernst-Ludwig-Kirchner-Str. 41  
D 51375 Leverkusen  
DE

Diese Person ist:

☐ nur Anmelder

☒ Anmelder und Erfinder

☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat):

DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungsstaaten

☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika

☒ nur die Vereinigten Staaten von Amerika

☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

Diese Person ist:

☐ nur Anmelder

☐ Anmelder und Erfinder

☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat):

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungsstaaten

☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika

☐ nur die Vereinigten Staaten von Amerika

☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

Diese Person ist:

☐ nur Anmelder

☐ Anmelder und Erfinder

☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat):

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungsstaaten

☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika

☐ nur die Vereinigten Staaten von Amerika

☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

☐ Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf einem zusätzlichen Fortsetzungsblatt angegeben.



**Feld Nr. V BESTIMMUNG VON STAATEN**

Die folgenden Bestimmungen nach Regel 4.9 Absatz a werden hiermit vorgenommen (bitte die entsprechenden Kästchen ankreuzen; wenigstens ein Kästchen muß angekreuzt werden):

**Regionales Patent**

- ☒ AP ARIPO-Patent: GH Ghana, GM Gambia, KE Kenia, LS Lesotho, MW Malawi, SD Sudan, SZ Swasiland, UG Uganda, ZW Simbabwe und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Harare-Protokolls und des PCT ist
- ☒ EA Eurasisches Patent: AM Armenien, AZ Aserbaidschan, BY Belarus, KG Kirgisistan, KZ Kasachstan, MD Republik Moldau, RU Russische Föderation, TJ Tadschikistan, TM Turkmenistan und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Eurasischen Patentübereinkommens und des PCT ist
- ☒ EP Europäisches Patent: AT Österreich, BE Belgien, CH und LI Schweiz und Liechtenstein, CY Zypern, DE Deutschland, DK Dänemark, ES Spanien, FI Finnland, FR Frankreich, GB Vereinigtes Königreich, GR Griechenland, IE Irland, IT Italien, LU Luxemburg, MC Monaco, NL Niederlande, PT Portugal, SE Schweden und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Europäischen Patentübereinkommens und des PCT ist
- ☒ OA OAPI-Patent: BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Zentralafrikanische Republik, CG Kongo, CI Côte d'Ivoire, CM Kamerun, GA Gabun, GN Guinea, GW Guinea-Bissau, ML Mali, MR Mauretanien, NE Niger, SN Senegal, TD Tschad, TG Togo und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat der OAPI und des PCT ist (falls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Verfahren gewünscht wird, bitte auf der gepunkteten Linie angeben) .....

**Nationales Patent (falls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Verfahren gewünscht wird, bitte auf der gepunkteten Linie angeben):**

- |                                                                                |                                                                                              |
|--------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------|
| <input checked="" type="checkbox"/> AL Albanien .....                          | <input checked="" type="checkbox"/> LS Lesotho .....                                         |
| <input checked="" type="checkbox"/> AM Armenien .....                          | <input checked="" type="checkbox"/> LT Litauen .....                                         |
| <input checked="" type="checkbox"/> AT Österreich .....                        | <input checked="" type="checkbox"/> LU Luxemburg .....                                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> AU Australien .....                        | <input checked="" type="checkbox"/> LV Lettland .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> AZ Aserbaidschan .....                     | <input checked="" type="checkbox"/> MD Republik Moldau .....                                 |
| <input checked="" type="checkbox"/> BA Bosnien-Herzegowina .....               | <input checked="" type="checkbox"/> MG Madagaskar .....                                      |
| <input checked="" type="checkbox"/> BB Barbados .....                          | <input checked="" type="checkbox"/> MK Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien ..... |
| <input checked="" type="checkbox"/> BG Bulgarien .....                         | <input checked="" type="checkbox"/> MN Mongolei .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> BR Brasilien .....                         | <input checked="" type="checkbox"/> MW Malawi .....                                          |
| <input checked="" type="checkbox"/> BY Belarus .....                           | <input checked="" type="checkbox"/> MX Mexiko .....                                          |
| <input checked="" type="checkbox"/> CA Kanada .....                            | <input checked="" type="checkbox"/> NO Norwegen .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> CH und LI Schweiz und Liechtenstein .....  | <input checked="" type="checkbox"/> NZ Neuseeland .....                                      |
| <input checked="" type="checkbox"/> CN China .....                             | <input checked="" type="checkbox"/> PL Polen .....                                           |
| <input checked="" type="checkbox"/> CU Kuba .....                              | <input checked="" type="checkbox"/> PT Portugal .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> CZ Tschechische Republik .....             | <input checked="" type="checkbox"/> RO Rumänien .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> DE Deutschland .....                       | <input checked="" type="checkbox"/> RU Russische Föderation .....                            |
| <input checked="" type="checkbox"/> DK Dänemark .....                          | <input checked="" type="checkbox"/> SD Sudan .....                                           |
| <input checked="" type="checkbox"/> EE Estland .....                           | <input checked="" type="checkbox"/> SE Schweden .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> ES Spanien .....                           | <input checked="" type="checkbox"/> SG Singapur .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> FI Finnland .....                          | <input checked="" type="checkbox"/> SI Slowenien .....                                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> GB Vereinigtes Königreich .....            | <input checked="" type="checkbox"/> SK Slowakei .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> GD Grenada .....                           | <input checked="" type="checkbox"/> SL Sierra Leone .....                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> GE Georgien .....                          | <input checked="" type="checkbox"/> TJ Tadschikistan .....                                   |
| <input checked="" type="checkbox"/> GH Ghana .....                             | <input checked="" type="checkbox"/> TM Turkmenistan .....                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> GM Gambia .....                            | <input checked="" type="checkbox"/> TR Türkei .....                                          |
| <input checked="" type="checkbox"/> HR Kroatien .....                          | <input checked="" type="checkbox"/> TT Trinidad und Tobago .....                             |
| <input checked="" type="checkbox"/> HU Ungarn .....                            | <input checked="" type="checkbox"/> UA Ukraine .....                                         |
| <input checked="" type="checkbox"/> ID Indonesien .....                        | <input checked="" type="checkbox"/> UG Uganda .....                                          |
| <input checked="" type="checkbox"/> IL Israel .....                            | <input checked="" type="checkbox"/> US Vereinigte Staaten von Amerika .....                  |
| <input checked="" type="checkbox"/> IN Indien .....                            | <input checked="" type="checkbox"/> UZ Usbekistan .....                                      |
| <input checked="" type="checkbox"/> IS Island .....                            | <input checked="" type="checkbox"/> VN Vietnam .....                                         |
| <input checked="" type="checkbox"/> JP Japan .....                             | <input checked="" type="checkbox"/> YU Jugoslawien .....                                     |
| <input checked="" type="checkbox"/> KE Kenia .....                             | <input checked="" type="checkbox"/> ZW Simbabwe .....                                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> KG Kirgisistan .....                       |                                                                                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> KP Demokratische Volksrepublik Korea ..... |                                                                                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> KR Republik Korea .....                    |                                                                                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> KZ Kasachstan .....                        |                                                                                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> LC Saint Lucia .....                       |                                                                                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> LK Sri Lanka .....                         |                                                                                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> LR Liberia .....                           |                                                                                              |

Kästchen für die Bestimmung von Staaten (für die Zwecke eines nationalen Patents), die dem PCT nach der Veröffentlichung dieses Formblatts beigetreten sind:  
und alle diejenigen Länder, die  
☒ am Anmeldetag dem PCT beigetreten sind  
☐ sind  
☐

**Erklärung bzgl. vorsorglicher Bestimmungen:** Zusätzlich zu den oben genannten Bestimmungen nimmt der Anmelder nach Regel 4.9 Absatz b auch alle anderen nach dem PCT zulässigen Bestimmungen vor mit Ausnahme der im Zusatzfeld genannten Bestimmungen, die von dieser Erklärung ausgenommen sind. Der Anmelder erklärt, daß diese zusätzlichen Bestimmungen unter dem Vorbehalt einer Bestätigung stehen und jede zusätzliche Bestimmung, die vor Ablauf von 15 Monaten ab dem Prioritätsdatum nicht bestätigt wurde, nach Ablauf dieser Frist als vom Anmelder zurückgenommen gilt. (Die Bestätigung einer Bestimmung erfolgt durch die Einreichung einer Mitteilung, in der diese Bestimmung angegeben wird, und die Zahlung der Bestimmungs- und der Bestätigungsgebühr. Die Bestätigung muß beim Anmeldeamt innerhalb der Frist von 15 Monaten eingehen.)



**Zusatzfeld** Wird dieses Zusatzfeld nicht benutzt, so sollte dieses Blatt dem Antrag nicht beigelegt werden.

1. Wenn der Platz in einem Feld nicht für alle Angaben ausreicht: In diesem Fall schreiben Sie "Fortsetzung von Feld Nr. ..." [Nummer des Feldes angeben] und machen die Angaben entsprechend der in dem Feld, in dem der Platz nicht ausreicht, vorgeschriebenen Art und Weise, insbesondere:

- (i) Wenn mehr als zwei Anmelder und/oder Erfinder vorhanden sind und kein "Fortsetzungsblatt" zur Verfügung steht: In diesem Fall schreiben Sie "Fortsetzung von Feld Nr. III" und machen für jede weitere Person die in Feld Nr. III vorgeschriebenen Angaben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.
- (ii) Wenn in Feld Nr. II oder III die Angabe "die im Zusatzfeld angegebenen Staaten" angekreuzt ist: In diesem Fall schreiben Sie "Fortsetzung von Feld Nr. II", "Fortsetzung von Feld Nr. III" bzw. "Fortsetzung von Feld Nr. II und Nr. III" und geben den Namen des Anmelders oder die Namen der Anmelder an und neben jedem Namen den Staat oder die Staaten (und/oder ggf. ARIPO-, eurasisches, europäisches oder OAPI-Patent), für die die bezeichnete Person Anmelder ist.
- (iii) Wenn der in Feld Nr. II oder III genannte Erfinder oder Erfinder/Anmelder nicht für alle Bestimmungsstaaten oder für die Vereinigten Staaten von Amerika als Erfinder benannt ist: In diesem Fall schreiben Sie "Fortsetzung von Feld Nr. II", "Fortsetzung von Feld Nr. III" bzw. "Fortsetzung von Feld Nr. II und Nr. III" und geben den Namen des Erfinders oder die Namen der Erfinder an und neben jedem Namen den Staat oder die Staaten (und/oder ggf. ARIPO-, eurasisches, europäisches oder OAPI-Patent), für die die bezeichnete Person Erfinder ist.
- (iv) Wenn zusätzlich zu dem Anwalt oder den Anwälten, die in Feld Nr. IV angegeben sind, weitere Anwälte bestellt sind: In diesem Fall schreiben Sie "Fortsetzung von Feld Nr. IV" und machen für jeden weiteren Anwalt die entsprechenden, in Feld Nr. IV vorgeschriebenen Angaben.
- (v) Wenn in Feld Nr. V bei einem Staat (oder bei OAPI) die Angabe "Zusatzpatent" oder "Zusatzzertifikat" oder wenn in Feld Nr. V bei den Vereinigten Staaten von Amerika die Angabe "Fortsetzung" oder "Teilfortsetzung" hinzugefügt wird: In diesem Fall schreiben Sie "Fortsetzung von Feld Nr. V" und geben den Namen des betreffenden Staats (oder OAPI) an und nach dem Namen jedes solchen Staats (oder OAPI) das Aktenzeichen des Hauptschutzrechts oder der Hauptschutzrechtsanmeldung und das Datum der Erteilung des Hauptschutzrechts oder der Einreichung der Hauptschutzrechtsanmeldung.
- (vi) Wenn in Feld Nr. VI die Priorität von mehr als drei früheren Anmeldungen beansprucht wird: In diesem Fall schreiben Sie "Fortsetzung von Feld Nr. VI" und machen für jede weitere frühere Anmeldung die entsprechenden, in Feld Nr. VI vorgeschriebenen Angaben.
- (vii) Wenn in Feld Nr. VI die frühere Anmeldung eine ARIPO Anmeldung ist: In diesem Fall schreiben Sie "Fortsetzung von Feld Nr. VI" und geben, unter Angabe der Nummer der Zeile, in der die frühere Anmeldung betreffenden Angaben gemacht sind, mindestens einen Staat an, der Mitglied der Pariser Verbandsübereinkunft zum Schutz des gewerblichen Eigentums ist und für den die frühere Anmeldung erfolgte.


2. Wenn, im Hinblick auf die Erklärung bzgl. vorsorglicher Bestimmungen in Feld Nr. V, der Anmelder Staaten von dieser Erklärung ausnehmen möchte: In diesem Fall schreiben Sie "Bestimmung(en), die von der Erklärung bzgl. vorsorglicher Bestimmungen ausgenommen ist(sind)" und geben den Namen oder den Zweibuchstaben-Code jedes so ausgeschlossenen Staates an.

3. Wenn der Anmelder für irgendein Bestimmungsamt die Vorteile nationaler Vorschriften betreffend unschädliche Offenbarung oder Ausnahmen von der Neuheitsschädlichkeit in Anspruch nimmt: In diesem Fall schreiben Sie "Erklärung betreffend unschädliche Offenbarung oder Ausnahmen von der Neuheitsschädlichkeit" und geben im folgenden die entsprechende Erklärung ab.

Fortsetzung von Feld Nr. IX.

1) 

Thomas Eckel

2) 

Michael Zobel

3) 

Dieter Wittmann





Feld Nr. VI PRIORITÄTSANSPRUCH		<input type="checkbox"/> Weitere Prioritätsansprüche sind im Zusatzfeld angegeben.		
Anmeldedatum der früheren Anmeldung (Tag/Monat/Jahr)	Aktenzeichen der früheren Anmeldung	Ist die frühere Anmeldung eine:		
		nationale Anmeldung: Staat	regionale Anmeldung: regionales Amt	internationale Anmeldung: Anmeldeamt
Zeile (1) (26.6.98) 26. Juni 1998	198 28 538.8	DE		
Zeile (2)				
Zeile (3)				

☐ Das Anmeldeamt wird ersucht, eine beglaubigte Abschrift der oben in der (den) Zeile(n) \_\_\_\_\_ bezeichneten früheren Anmeldung(en) zu erstellen und dem internationalen Büro zu übermitteln (nur falls die frühere Anmeldung(en) bei dem Amt eingereicht worden ist(sind), das für die Zwecke dieser internationalen Anmeldung Anmeldeamt ist)

\* Falls es sich bei der früheren Anmeldung um eine ARIPO-Anmeldung handelt, so muß in dem Zusatzfeld mindestens ein Staat angegeben werden, der Mitgliedstaat der Pariser Verbandsübereinkunft zum Schutz des gewerblichen Eigentums ist und für den die frühere Anmeldung eingereicht wurde.

## Feld Nr. VII INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE

Wahl der internationalen Recherchenbehörde (ISA) (falls zwei oder mehr als zwei internationale Recherchenbehörden für die Ausführung der internationalen Recherche zuständig sind, geben Sie die von Ihnen gewählte Behörde an; der Zweibuchstaben-Code kann benutzt werden):	Antrag auf Nutzung der Ergebnisse einer früheren Recherche; Bezugnahme auf diese frühere Recherche (falls eine frühere Recherche bei der internationalen Recherchenbehörde beantragt oder von ihr durchgeführt worden ist):
ISA /	Datum (Tag/Monat/Jahr)      Aktenzeichen      Staat (oder regionales Amt)

## Feld Nr. VIII KONTROLLISTE; EINREICHUNGSSPRACHE

Diese internationale Anmeldung enthält die folgende Anzahl von Blättern:	Dieser internationalen Anmeldung liegen die nachstehend angekreuzten Unterlagen bei:
Antrag : 5	1. <input checked="" type="checkbox"/> Blatt für die Gebührenberechnung
Beschreibung (ohne Sequenzprotokollteil) : 28	2. <input type="checkbox"/> Gesonderte unterzeichnete Vollmacht
Ansprüche : 4	3. <input type="checkbox"/> Kopie der allgemeinen Vollmacht; Aktenzeichen (falls vorhanden):
Zusammenfassung : 1	4. <input type="checkbox"/> Begründung für das Fehlen einer Unterschrift
Zeichnungen :	5. <input checked="" type="checkbox"/> Prioritätsbeleg(e), in Feld Nr. VI durch folgende Zeilennummer gekennzeichnet:
Sequenzprotokollteil der Beschreibung :	6. <input type="checkbox"/> Übersetzung der internationalen Anmeldung in die folgende Sprache:
Blattzahl insgesamt : 38	7. <input type="checkbox"/> Gesonderte Angaben zu hinterlegten Mikroorganismen oder anderem biologischen Material
Abbildung der Zeichnungen, die mit der Zusammenfassung veröffentlicht werden soll (Nr.):	8. <input type="checkbox"/> Protokoll der Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenzen in computerlesbarer Form
	9. <input checked="" type="checkbox"/> Sonstige (einzeln auflisten): 1. Abbuchungsauftrag
	Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht wird:

## Feld Nr. IX UNTERSCHRIFT DES ANMELDERS ODER DES ANWALTS

Der Name jeder unterzeichnenden Person ist neben der Unterschrift zu wiederholen, und es ist anzugeben, sofern sich dies nicht eindeutig aus dem Antrag ergibt, in welcher Eigenschaft die Person unterzeichnet.

BAYER AKTIENGESellschaft

 Weitere Unterschriften  
s. Blatt 4

Dr. Michael Feldhues

Dr. Meike Klimiuk-Japadita

Vom Anmeldeamt auszufüllen	
1. Datum des tatsächlichen Eingangs dieser internationalen Anmeldung:	2. Zeichnungen <input type="checkbox"/> eingegangen:  <input type="checkbox"/> nicht eingegangen:
3. Geändertes Eingangsdatum aufgrund nachträglich, jedoch fristgerecht eingegangener Unterlagen oder Zeichnungen zur Vervollständigung dieser internationalen Anmeldung:	
4. Datum des fristgerechten Eingangs der angeforderten Richtigstellungen nach Artikel 11(2) PCT:	
5. Internationale Recherchenbehörde (falls zwei oder mehr zuständig sind): ISA /	6. <input type="checkbox"/> Übermittlung des Recherchenexemplars bis zur Zahlung der Recherchegebühr aufgeschoben

Vom Internationalen Büro auszufüllen

Datum des Eingangs des Aktenexemplars beim Internationalen Büro:



7 18

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

REC'D 27 JUN 2000

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT WIPO PCT



(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 038-PC KM	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/04061	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 12/06/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 26/06/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08K5/5399		
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.  
  
☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).  
  
Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderische Tätigkeit und der gewerbliche Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  15/12/1999	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  23.06.2000
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Wengeler. H  Tel. Nr. +49 89 2399 8311  



**I. Grundlage des Berichts**

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

**Beschreibung, Seiten:**

1-28                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-18                      ursprüngliche Fassung

2. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,              Seiten:  
☐ Ansprüche,                Nr.:  
☐ Zeichnungen,              Blatt:

3. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)):

4. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. B begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

**1. Feststellung**

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-17
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-17
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-17
	Nein: Ansprüche	

**2. Unterlagen und Erklärungen**

**siehe Beiblatt**



**VIII. B stimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung**

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

**si he Beiblatt**





Relevanter Stand der Technik:

D1: EP-A-0 728 811

D2: EP-A-0 482 451

## **V**

### **1. Neuheit**

D1 (Anspr. 1-8) beschreibt thermoplastische Formmassen enthaltend:

(A) 40-90 Gew. Tl. PC; (B) 1-60 Gew. Tl. Pfropfpolymerisat, bestehend aus 60-90 Gew% aromat. Vinyl Monomer (S. 3, Z. 36-37) und 10-40 Gew% Dien Kautschuk (S.3, Z. 17-28); (C) 0-40 Gew. Tl. Vinylcopolymerisate (S.3, Z. 46-59); (D) 1-30 Gew. Tl. Phosphazene (z.B. Phenoxyposphazen, Anspr. 3) und (E) 0,05-1,0 Gew. Tl. Polytetrafluoroethylen.

Die Mischung zeichnet sich durch gute flammwidrige Eigenschaften aus.

Der Gegenstand der Ansprüche 1-18 ist im Hinblick auf diesen Stand der Technik nicht neu.

### **2. Erfinderische Tätigkeit**

Es liegen keine Vergleichsversuche im Hinblick auf D1 oder die eigene Anmeldung D2 vor.

Der Unterschied zu D2 (siehe Ansprüche 1-6) liegt lediglich in der Verwendung einer anderen Phosphorkomponente. Aber selbst gegenüber diesem Stand der Technik hat die Anmelderin keine Vergleichsversuche vorgelegt, die evtl. zeigen könnten, daß das eingesetzte Phosphazen zu einer Verbesserung der flammwidrigen Mischung führen könnte.

Es ist deshalb z.Z. völlig unklar, in welcher Weise (bei gegebener Neuheit) eine erfinderische Tätigkeit anerkannt werden könnte.



**VIII**

Die Pfropfausbeute (Anspr. 8-10) ist völlig irrelevant für das Produkt an sich. Ob der Dienkautschuk gemäß B2) bei seinem Herstellungsverfahren mit einer Ausbeute von 60% oder 85% erhalten wurde, ist für die Frage der Neuheit der thermoplastischen Formmassen nicht relevant. Da die Ansprüche 8-10 keinen Beitrag zur eindeutigen Definition des Produktes an sich beitragen, sind sie überflüssig und können in der jetzigen Form nur zu Unklarheiten führen (Art. 6 PCT).



## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C08K5/5399 C08L69/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 482 451 A (BAYER AG) 29. April 1992 (1992-04-29) Seite 4, Zeile 40 - Zeile 48; Ansprüche 1,6; Beispiele ---	1,6,11, 15
A	EP 0 315 868 A (BAYER AG) 17. Mai 1989 (1989-05-17) in der Anmeldung erwähnt Seite 4, Zeile 1 - Zeile 15 Seite 9, Zeile 23 - Zeile 26 Ansprüche 1,8,9 ---	1,6,11, 15
A	EP 0 728 811 A (MITSUBISHI CHEM CORP) 28. August 1996 (1996-08-28) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 56 -Seite 3, Zeile 7; Ansprüche 1,4 --- -/--	1,6,12

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&amp;" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

27. September 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

06/10/1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Engel, S



## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie <sup>a</sup>	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 417 839 A (STAMICARBON) 20. März 1991 (1991-03-20) Seite 6, Zeile 2 - Zeile 6 ----	1,6,12
A	EP 0 363 608 A (GEN ELECTRIC) 18. April 1990 (1990-04-18) Ansprüche 1,6 -----	1,6





# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/04061

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0482451 A	29-04-1992	DE 4033806 A	30-04-1992
		DE 59107649 D	09-05-1996
		ES 2084748 T	16-05-1996
		JP 5017678 A	26-01-1993
		US 5552465 A	03-09-1996
EP 315868 A	17-05-1989	DE 3738143 A	18-05-1989
		DE 3853765 D	14-06-1995
		ES 2070841 T	16-06-1995
		JP 1165656 A	29-06-1989
		JP 2744031 B	28-04-1998
		US 4937285 A	26-06-1990
EP 0728811 A	28-08-1996	JP 9053009 A	25-02-1997
EP 0417839 A	20-03-1991	US 4946885 A	07-08-1990
		DD 297656 A	16-01-1992
		JP 3100064 A	25-04-1991
		KR 9310924 B	17-11-1993
EP 0363608 A	18-04-1990	NL 8802346 A	17-04-1990
		AU 630629 B	05-11-1992
		AU 4334989 A	18-04-1990
		DE 68912700 D	10-03-1994
		DE 68912700 T	25-08-1994
		ES 2061834 T	16-12-1994
		JP 2115262 A	27-04-1990
		WO 9003417 A	05-04-1990
		US 5204394 A	20-04-1993



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>Le A 33 038</b>	<div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div style="width: 45%;"> <b>WEITERES VORGEHEN</b> </div> <div style="width: 55%;">           siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5         </div> </div>	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 99/ 04061</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>12/06/1999</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>26/06/1998</b>
Anmelder  <b>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT et al.</b>		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

#### 1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ **Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen** (siehe Feld I).

3. ☐ **Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung** (siehe Feld II).

#### 4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

#### 5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. ----

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.



## FLAME-RESISTANT POLYCARBONATE ABS MOLDING MATERIALS

## ABSTRACT OF THE DISCLOSURE

The present invention relates to thermoplastic polycarbonate molding compositions which contain phosphazenes and special graft polymers produced by means of redox initiator systems and are distinguished by substantially improved mechanical properties.



09/720273  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference Le A 33 038	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP99/04061	International filing date (day/month/year) 12 June 1999 (12.06.99)	Priority date (day/month/year) 26 June 1998 (26.06.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08K 5/5399, C08L 69/00		
Applicant BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of <u>5</u> sheets, including this cover sheet.  <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  These annexes consist of a total of _____ sheets.
3. This report contains indications relating to the following items:  I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application

RECEIVED  
MAR 23 2001  
PCT 1700 MAIL ROOM

Date of submission of the demand 15 December 1999 (15.12.99)	Date of completion of this report 23 June 2000 (23.06.2000)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.





**I. Basis of the report**

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-28, as originally filed,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☒ the claims, Nos. 1-18, as originally filed,  
Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_, as originally filed,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/04061

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims		YES
	Claims	1-17	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-17	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-17	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

Relevant prior art:

D1: EP-A-0 728 811

D2: EP-A-0 482 451

#### 1. Novelty

D1 (Claims 1-8) describes thermoplastic moulding compounds containing:

- (A) 40-90 parts by weight polycarbonate;
- (B) 1-60 parts by weight graft polymer composed of 60-90% by weight aromatic vinyl monomer (page 3, lines 36-37) and 10-40% by weight diene rubber (page 3, lines 17-28);
- (C) 0-40 parts by weight vinyl copolymers (page 3, lines 46-59);
- (D) 1-30 parts by weight phosphazene (e.g. phenoxyphosphazene, Claim 3); and
- (E) 0.05-1.0 parts by weight polytetrafluoroethylene.

The mixture is characterised by good flame-retardant properties.



The subject matter of Claims 1-18 is not novel over this prior art.

2. Inventive step

No comparative tests with D1 or D2, which is an application by the same applicant, have been submitted.

The difference from D2 (see Claims 1-6) lies only in the use of another phosphorus component. However, even with respect to this prior art, the applicant has not submitted any comparative tests which might show that the phosphazene used could lead to an improved flame-retardant mixture.

Consequently, it is at present entirely unclear how an inventive step could be acknowledged (if novelty were established).



**VIII. Certain observations on the international application**

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

The graft yield (Claims 8-10) is entirely irrelevant to the product *per se*. It is not relevant to the question of the novelty of the thermoplastic moulding compounds to know whether the diene rubber in B2) was obtained during its production process with a yield of 60% or 85%. Since Claims 8-10 do not make any contribution to the clear definition of the product *per se*, they are superfluous and in their present form can only lead to a lack of clarity (PCT Article 6).

